



TITLE:

低速原子衝突による偏極緩和過程
の時間分解偏光分光研究(
Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

松隈, 啓

CITATION:

松隈, 啓. 低速原子衝突による偏極緩和過程の時間分解偏光分光研究. 京都大学, 2013, 博士(工学)

ISSUE DATE:

2013-03-25

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k17513>

RIGHT:

低速原子衝突による偏極緩和過程の
時間分解偏光分光研究

2013

松隈 啓

目次

第1章 序章	1
1.1 原子衝突実験の概要	1
1.2 レーザーの登場とレーザーを用いた原子衝突実験	2
1.3 衝突断面積と原子間ポテンシャル	2
1.4 重い粒子同士の高速衝突過程と低速衝突過程	3
1.5 偏極と原子衝突による偏極緩和	3
1.6 希ガス原子の偏極緩和過程	6
1.6.1 偏極緩和観測実験	6
1.6.2 偏極緩和過程に対する理論	8
1.7 偏極緩和計測の意義と本研究の目的	11
1.8 本論文の構成	11
第2章 基礎事項	13
2.1 断面積と緩和速度係数	13
2.2 原子から放射される光	14
2.2.1 磁気副準位間の遷移確率	14
2.2.2 放射強度の角度分布および偏光	15
2.3 密度行列と状態多極子	16
2.3.1 密度行列と状態多極子の定義	16
2.3.2 偏光成分の蛍光強度	17
2.4 ふく射再吸収	18
2.4.1 ふく射再吸収による励起原子の見かけの寿命の変化	18
2.4.2 ふく射再吸収による偏極緩和	19
第3章 励起ネオン原子のアライメント緩和観測	22
3.1 LIF 実験装置	23
3.2 実験結果	26
3.2.1 LIF 計測の解析	26
3.2.2 ポピュレーション緩和速度	30
3.2.3 アライメント緩和速度	32
3.3 ふく射再吸収によるポピュレーション緩和とアライメント緩和	34
3.3.1 自己吸収法による線吸収の測定	34
3.3.2 自己吸収法による線吸収計測の結果	36
3.3.3 Monte Carlo シミュレーションによるポピュレーション緩和とアライメント緩和の評価	37

第 4 章 励起アルゴン原子のアライメント緩和観測	42
4.1 LIF 計測	42
4.2 実験結果	42
4.2.1 ポピュレーション緩和速度	42
4.2.2 アライメント緩和速度	44
4.3 ふく射再吸収によるポピュレーション緩和とアライメント緩和	46
4.3.1 自己吸収法による線吸収計測	46
4.3.2 Monte Carlo シミュレーションによるポピュレーション緩和とアライメント緩和 の評価	46
5 章 励起ネオン原子のオリエンテーション緩和観測	51
5.1 オリエンテーション緩和 LIF 計測実験を行う際のアライメント緩和 LIF 計測実験か らの変更点	51
5.2 実験結果と解析	54
5.2.1 LIF 計測の解析	54
5.2.2 ポピュレーション緩和、アライメント緩和とオリエンテーション緩和	59
第 6 章 考察	64
6.1 励起ネオン原子の偏極緩和速度係数と温度依存性	64
6.1.1 Bahrim らの理論との比較	64
6.1.2 Omont、Wang らの理論との比較	69
6.2 励起ネオン原子のアライメント緩和速度係数に対するオリエンテーション緩和速度 係数の比	71
6.3 励起アルゴン原子の偏極緩和速度係数と平均断面積	73
第 7 章 総括	75
Appendix A 自己吸収法とふく射再吸収によるポピュレーション緩和と偏極緩和のシミュ レーション	77
A.1 自己吸収法	77
A.2 下準位のポピュレーションと吸収係数	79
A.3 ふく射再吸収による偏極緩和シミュレーション	79
A.4 ふく射再吸収による偏極緩和シミュレーションの詳細	81
参考文献	84
謝辞	87

第 1 章 序章

1.1 原子衝突実験の概要

1909 年に Rutherford が提唱した原子の殻模型[1]を検証するために、Geiger と Marsden は、高い運動エネルギーを持つ速度の揃ったアルファ粒子（ヘリウム 4 原子核）の金属薄膜による散乱実験[2]を行った。この実験が、速度の揃った荷電粒子と原子の最初の衝突実験である。実験の結果、大部分のアルファ粒子は直進したが、一部のアルファ粒子が大きく進行方向を曲げた。このことから、原子は負の電荷を持つ電子と、正の電荷を持つ原子核に分かれており、アルファ粒子が電子の間をすり抜けて原子核と近接するような条件下では、Coulomb ポテンシャルの強い斥力によって大きな角度で散乱されると考えられるようになった。

1926 年に波動力学が誕生すると[3]、衝突の問題は量子力学の一部として確立した。波動力学の黎明期前後には、電子と原子との衝突実験[4] など波動性の顕著な系が多く扱われていたが、原子と原子、イオン、分子などの衝突も、例えば微細構造準位間の励起移行過程や荷電交換反応などの非弾性衝突に対する理論が発展し[e.g. 5-9]、注目されるようになった。さらに、化学反応、天体物理、星間物質科学、大気物理、レーザー科学、放射線物理、核融合など様々な研究分野で原子衝突に関する理解が必要とされ、原子と原子、イオン、分子との衝突や、炭水化合物イオンなどの重イオンが関わる衝突などのデータベースも必要とされている。

原子衝突実験は荷電粒子（イオン・電子・陽電子）の関わる衝突と中性粒子（原子・分子）同士の衝突に大別できる。

前者は特に、第二次大戦前後の加速器技術の発展により盛んになった。荷電粒子の関わる衝突は電場・磁場を用いて衝突エネルギー制御ができるというのが大きな特徴である。分子種の分析、検出が比較的容易である点から、多価イオンの衝突実験が盛んに行われるようになり、イオンビームを標的粒子がある衝突室に導入して衝突を起こす方法[e.g.10]や、ビーム合流法[e.g.11]、ビームガイド法[e.g.12]、イオン移動管法[e.g.13]といった様々な実験手法が確立されている。

後者の中性原子同士の衝突実験も、例えば、高速イオンを荷電交換反応を用いて中性原子にすることで、速度の揃った衝突実験が行われた[e.g.14]が、これらのビームは、熱拡散などの要因で、 ~ 1 eV 以下の衝突実験は困難とされている。また、超音速膨張を用いた 100 meV 前後の速度の揃った原子ビームを用いた実験も報告されている[15]。ビーム実験が困難な数~数百 meV 程度の低速衝突実験は、熱平衡の気体を持つ運動エネルギーを用いる。

1.2 レーザーの登場とレーザーを用いた原子衝突実験

1960 年に Maiman がルビーを媒質とする世界初のレーザーの発振に成功した[16]。その後、1960 年代初頭に気体レーザー[17]、液体レーザー[18]、半導体レーザー[19]など様々な媒体によるレーザー発振が可能になった。とりわけ液体レーザーの一種である色素レーザー[20]は、発振波長を近紫外域から可視域、近赤外域にわたって連続的に変化させることができるため、原子やイオンの選択励起に盛んに用いられるようになった。

レーザーを用いた分光法としては、原子やイオンによる光の吸収スペクトルから物理量を求めるレーザー吸収分光やレーザー光に励起された原子が放出する蛍光のスペクトルや強度の時間発展を観測するレーザー誘起蛍光（LIF: Laser Induced Fluorescence）法などがある。これらのレーザーを用いた実験技術と、1.1 節で紹介した原子衝突実験技術を併せて用いることで、励起状態の衝突実験も可能となった。

1.3 衝突断面積と原子間ポテンシャル

衝突の起こりやすさの程度を表す量として衝突断面積が用いられる。ここで、簡単のために静止している剛体球 A に剛体球 B が衝突する場合を考える。A を標的粒子と呼び、B を入射粒子と呼ぶ。粒子 A、B の半径をそれぞれ r_A 、 r_B とし、Figure 1.1 のように衝突する場合を考える。図中の b は衝突径数と呼ばれ、入射粒子が標的粒子に向かって進むときに、粒子間に力が働かないとした場合の最近接距離である。2 つの粒子は $b < r_A + r_B$ であれば衝突するが、 $b \geq r_A + r_B$ であれば衝突しない。粒子 B から見た粒子 A の大きさは $\pi(r_A + r_B)^2$ と表され、これが衝突断面積に相当する。

原子は実際には剛体ではなく、原子核の周りに電子が存在している。ここで電子の存在確率の空間分布を電子と同じ密度分布を持つ雲に例えて、電子雲と呼ぶ。例えば、中性の原子同士が衝突する場合を考える。原子間距離がある程度離れていると、最初はお互いの力を及ぼさないが、ある程度近づくと、お互いが一時的に電気双極子を作り合い（誘起双極子）、引力が生じる。さらに接近してお互いの電子雲同士が重なる程度になると、電子雲同士、原子核同士のクーロンポテンシャルによる斥力が優勢となる。

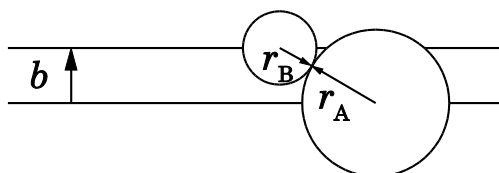


Figure 1.1 衝突する 2 つの剛体と衝突径数。

さらに、原子の取りうる様々な電子状態を考慮すると、原子間ポテンシャルは無数にあり、非弾性衝突はあるポテンシャル曲線から別のポテンシャル曲線に移行する過程であると考えられる。

以上のことから、弾性衝突からは 1 本のポテンシャル曲線を、非弾性衝突からは複数のポテンシャル曲線を推定することができる。

1.4 重い粒子同士の高速衝突過程と低速衝突過程

この節以降は、原子やイオンなど重い粒子同士の衝突を考える。重い粒子同士の衝突は、励起や電離、電荷移行、励起移行などの非弾性衝突を引き起こす最外殻電子の速さに比べて、原子核同士の相対運動の速さが速いか遅いかで、それぞれ高速衝突過程、低速衝突過程に分類される。高速衝突では、電子が束縛軌道を 1 周する間もなく衝突が短時間で終わる。一方、低速衝突では、衝突の途中で、電子は原子の軌道を何周も回る。さらに、原子間距離がある程度近づくと、過渡的な分子を形成し、電子は分子軌道を周回するようになる。この過渡的な分子を準分子と呼ぶ。

低速衝突に対しては、近似的に準分子を構成する原子核を固定して、電子波動関数とポテンシャルエネルギーを求める方法がある。これを断熱近似と言う。断熱近似に基づいて、求められた原子間ポテンシャルエネルギーの原子間距離依存性を示した曲線を断熱ポテンシャルエネルギー曲線、または単に断熱ポテンシャル曲線と呼ぶ。限りなくゆっくり原子衝突が起こる場合には、1 本の断熱ポテンシャル曲線に沿った衝突が起こるため、電子状態は衝突の前後で変わらないが、有限の速度で原子が近づく場合には、異なる断熱ポテンシャル曲線の間で遷移が起こりうる。電子状態が変化する際には、2 本の断熱ポテンシャル曲線が交差する、または近接するとそれらの電子状態間の遷移確率が大きくなる[5-9]。このような断熱ポテンシャル間の遷移を非断熱遷移と呼ぶ。

また、低速衝突では高速衝突に比べ、原子同士が比較的離れた所で古典的転回点（最近接距離）を迎えるため、異なる断熱ポテンシャル曲線間の長距離領域での相互作用の理解も重要になる。

1.5 偏極と原子衝突による偏極緩和

全角運動量量子数 J をもつあるエネルギー準位にある原子の集団を考える。このエネルギー準位はさらに $2J+1$ 個の磁気量子数 M によって分類される量子状態を持つ。ここで、 M は J の量子化軸への射影成分である。これらの同じ J をもつ準位にある原子は、磁場中で M に応じて準位が分離するが、磁場を印加しない場合にはエネルギーが同一である。これを準位が縮退しているという。

磁気量子数 $M = m$ をもつ原子が他の粒子と衝突して別の磁気量子数 $M = m'$ に変化する

ことがある。これを磁気副準位間の励起移行過程と呼ぶ。

例えば、 $J=1$ の原子を標的粒子とし、入射原子は $J=0$ である場合を考える。衝突する2つの原子が十分離れているとき、標的原子の波動関数は、

$$\Psi = C_{M=+1}\psi_{M=+1} + C_{M=0}\psi_{M=0} + C_{M=-1}\psi_{M=-1} \quad (1.1)$$

で表される。ここで $\psi_{M=m}$ は $M=m$ 状態の波動関数を表し、 $C_{M=m}$ はその展開係数を表す。原子が準分子を形成するほど近づくと、原子の電子系の全角運動量を分子軸に射影した成分 Ω が良い量子数となる。ここで良い量子数とは、エネルギー固有値を表現する量子数のことを言う。このとき、系全体の波動関数は

$$\Psi = C_{\Omega=1}\psi_{\Omega=1} + C_{\Omega=0}\psi_{\Omega=0} \quad (1.2)$$

と書ける。ここで $\psi_{\Omega=\mu}$ は $\Omega=\mu$ 状態の波動関数を表し、 $C_{\Omega=\mu}$ はその展開係数を表す。この展開係数の時間発展は

$$\begin{aligned} \frac{dC_{\Omega=1}(t)}{dt} &= -\frac{bv}{R^2} \exp(i\Delta\varphi(t)) C_{\Omega=0}(t) \\ \frac{dC_{\Omega=0}(t)}{dt} &= \frac{bv}{R^2} \exp(-i\Delta\varphi(t)) C_{\Omega=1}(t) \end{aligned} \quad (1.3)$$

と書けることが示されている[21]。ここで b は衝突径数、 v は衝突速度、 R は原子間距離、 $\Delta\varphi$ は

$$\Delta\varphi(t) = \int_0^t V_{\Omega=1}(R)dt - \int_0^t V_{\Omega=0}(R)dt \quad (1.4)$$

で与えられる量で波動関数の位相差と呼ばれる。ここで $V_{\Omega=\mu}$ は $\Omega=\mu$ の断熱ポテンシャルエネルギーである。準分子を形成しない程度に、原子が十分離れると、標的原子の波動関数は、再び(1.1)の形で書ける。このとき、終状態が磁気量子数 $M=m'$ 状態へと励起移行する遷移する確率は $|C_{M=m'}|^2$ で書ける。このように、 Ω の異なる断熱ポテンシャル曲線エネルギーの違いが、磁気副準位間の励起移行過程に対して重要である。 Ω の異なる断熱ポテンシャル曲線は原子間距離が無限大の極限で重なるが、原子間距離が有限であれば、双極子分極率の違いや様々な状態の断熱ポテンシャル曲線との擬交差により重ならなくなる。

磁気副準位間のポピュレーションの偏りを偏極と呼ぶ。実験での磁気副準位間の励起移行過程の観測は、偏極した原子集団に対して、偏極の緩和過程を観測することで行われる。また、偏極は量子化軸に対して対称な場合と非対称な場合に分類でき、それぞれアライメント（整列）、オリエンテーション（配向）と言う。Figure 1.2 に $J=1$ の原子のアライメントとオリエンテーション、およびその緩和の模式図を示す。

ここで偏極した原子集団の時間発展を考える。ある準位のポピュレーションの時間変化を表す方程式を速度方程式と呼ぶ[22]。ここでは $J=1$ をもつ原子の偏極緩和過程について速度方程式を用いて考える。 $M=-1, 0, +1$ をもつ磁気副準位のポピュレーションをそれぞれ n_{-1} 、 n_0 、 n_{+1} とし、磁気副準位間の励起移行、および、それ以外の準位への放射遷移

と衝突によるポピュレーション緩和を考える。ここで、放射速度や衝突によるポピュレーション緩和速度は $M = -1, 0, +1$ の各磁気副準位に対して同じである場合を仮定する。このとき速度方程式は、

$$\begin{aligned}\frac{dn_{-1}(t)}{dt} &= -(k_{01} + k_{-11} + \Gamma)n_{-1}(t) + k_{01}n_0(t) + k_{-11}n_{+1}(t) \\ \frac{dn_0(t)}{dt} &= k_{01}n_{-1}(t) - (2k_{01} + \Gamma)n_0(t) + k_{01}n_{+1}(t) \\ \frac{dn_{+1}(t)}{dt} &= k_{-11}n_{-1}(t) + k_{01}n_0(t) - (k_{01} + k_{-11} + \Gamma)n_{+1}(t)\end{aligned}\tag{1.5}$$

と書ける。ここで k_{01} 、 k_{-11} はそれぞれ $M = 0 \leftrightarrow +1$ 、 $M = -1 \leftrightarrow +1$ 間の励起移行速度を、 Γ はそれ以外の準位への放射遷移速度と衝突によるポピュレーション緩和速度を表す。励起移行速度とは、原子が単位時間あたりに励起移行する確率のことであり、同様に放射遷移速度、ポピュレーション緩和速度は単位時間あたりにそれぞれ放射遷移、ポピュレーション緩和する確率である。

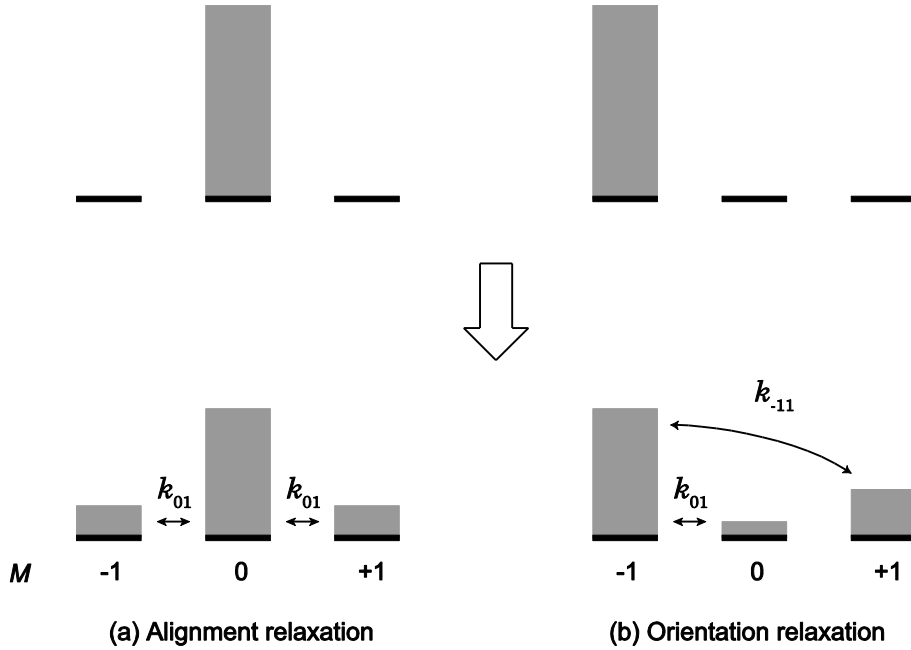


Figure 1.2 偏極緩和の模式図。(a)アライメント緩和、(b)オリエンテーション緩和。
 k_{01} 、 k_{-11} はそれぞれ $M = 0 \leftrightarrow +1$ 、 $M = -1 \leftrightarrow +1$ 間の励起移行速度を表す。

1.6 希ガス原子の偏極緩和過程

1.6.1 偏極緩和観測実験

励起希ガス原子の偏極緩和衝突実験は 1960 年代後半に、Scheerer、Carrington、Grandin らが始めた[23-30]。希ガス原子を対象とする衝突実験は室温以下の低温、気体によっては液体窒素温度（77 K）以下や液体ヘリウム温度（4 K）程度の低温環境下でも可能であることに特徴がある。熱平衡の気体を持つ運動エネルギーを用いる原子衝突実験では、衝突する原子の速度が単色ではなく、分布を持つため、ある特定の速度に対する断面積を評価することは困難である。このような実験では、緩和過程を例にとると、摂動を与える原子の単位数密度あたりの緩和速度の変化率を評価することができる。これを緩和速度係数と呼ぶ。また、緩和速度係数を原子集団のもつ平均速度で除した値を緩和平均断面積と呼ぶことにする。

Carrington らはネオン気体放電またはネオン—ヘリウム混合気体放電に対して、放電管形状に由来してわずかに生じた偏極に注目し、Hanle 効果[31-33]による測定で励起ネオン原子（ $2p_2$ 、 $2p_4$ 、 $2p_5$ 、 $2p_6$ 、 $2p_7$ 、 $2p_8$ 、 $2p_9$ 、 $2p_{10}$ 準位）のヘリウム原子衝突、ネオン原子衝突による 85、315、870 K におけるアライメント崩壊平均断面積を求めた。ただし、 $2p_{10}$ 準位の測定に対しては測定を試みたが、信号が弱かったために 315 K に対してのみ、定量的に評価した。Figure 1.3(a)にネオン原子の部分的なエネルギー準位図を示す。ここで、 $2p_i$ ($i = 1 \sim 10$) 準位、 $1s_k$ ($k = 2 \sim 5$) 準位は Paschen の記法と呼ばれる方法で規定された準位である。

1970 年代前半～1980 年代にかけて、Grandin らは Carrington らと同じ方法[28]、さらに大きく偏極した状態を作るためにレーザー光を用いた方法[29、30]で、Hanle 信号を測定し、励起アルゴン原子（ $2p_2$ 、 $2p_3$ 、 $2p_4$ 、 $2p_6$ 、 $2p_7$ 、 $2p_8$ 、 $2p_9$ 準位）のヘリウム原子、ネオン原子、アルゴン原子、クリプトン原子衝突によるアライメント崩壊、オリエンテーション崩壊平均断面積を 300～700 K の温度範囲で求めた。Figure 1.3(b)にアルゴン原子の部分的なエネルギー準位図を示す。

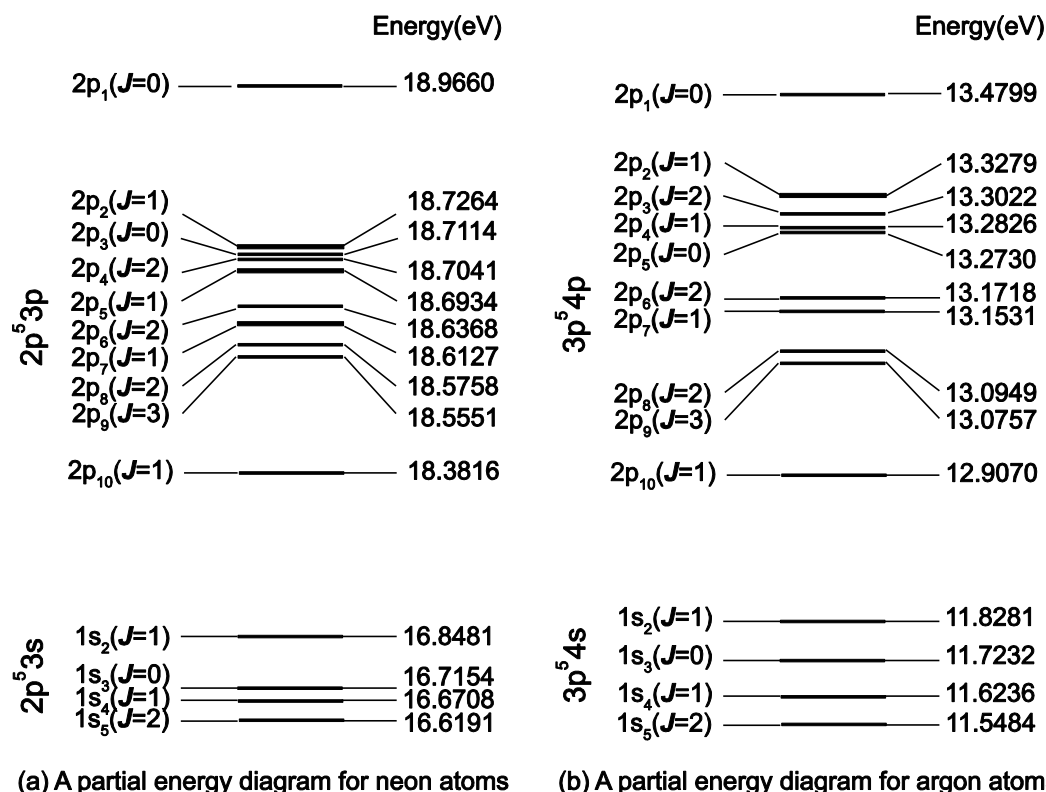


Figure 1.3 (a) 励起ネオン原子、(b) 励起アルゴン原子の部分的なエネルギー準位図。右側の数値は基底状態のエネルギーを基準とした各準位の励起エネルギー。

Fujimoto と Matsumoto は、レーザー誘起蛍光法を用いて、励起ネオン原子 $2p_2$ 準位に対する偏光分光測定を行った。その結果、Carrington や Grandin らが測定したアライメント崩壊やオリエンテーション崩壊の平均断面積には磁気副準位間の遷移のみならず、同じ電子配置の微細構造準位間の遷移に対する断面積が含まれていることを示した[34]。

1997 年に、Wakabayashi らは励起ネオン原子 ($2p_2$ 準位、 $2p_7$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和速度係数を、 $2p_2$ 準位に対しては 77 ~ 650 K の温度範囲で、 $2p_7$ 準位に対しては 42 ~ 650 K の温度範囲で決定した[21]。2002 年には同グループの Seo らによって、15 ~ 300 K の温度範囲で励起ネオン原子 ($2p_2$ 準位、 $2p_7$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和速度係数が測定された[35]。実験結果を Figure 1.4(a) に示す。また、2004 年に Nimura らはレーザー誘起蛍光法を用いて、励起ネオン原子 ($2p_2$ 準位) のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和速度係数を 15 ~ 300 K の温度範囲で求めた[36]。実験結果を Figure 1.4(b) に示す。Wakabayashi、Seo、Nimura らの求めたアライメント緩和速度係数、オリエンテーション緩和速度係数は温度に対して正の相関を見せ、温度の指数関数でよく表された。

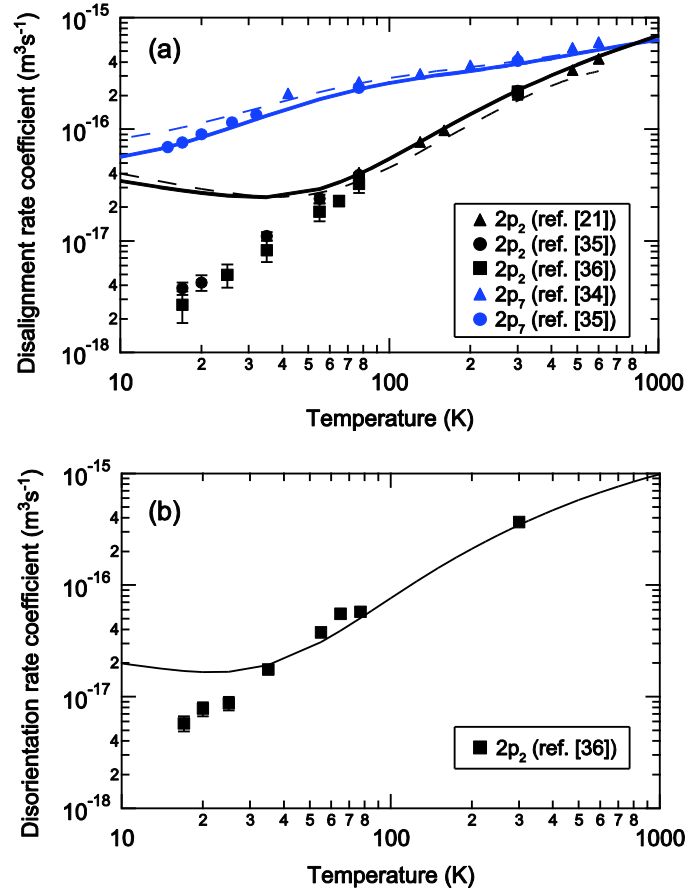


Figure 1.4 励起ネオン原子 ($2p_2$ 、 $2p_7$ 準位) のヘリウム原子衝突による(a)アライメント緩和速度係数、(b)オリエンテーション緩和速度係数の温度依存性。(a)破線は Bahrim らが最初に発表した理論値[41]。実線は原子間ポテンシャルを修正することによって得た理論値[43]。(b)実線は Bahrim らによる理論値[44]

1.6.2 偏極緩和過程に対する理論

1960 年代半ばから後半にかけて、理論研究者の Omont、Wang らは原子間ポテンシャルが原子間距離の-6 乗に比例するポテンシャル (van der Waals ポテンシャル) に従うとし、直線軌道近似を仮定すると、偏極緩和平均断面積が、

$$\sigma_J^{(x)} = \left(\frac{\pi p_A^2 p_B^2}{16 \langle \Delta E_B \rangle} \right)^{2/5} \frac{\langle v^{3/5} \rangle}{\langle v \rangle} \phi_J^{(x)} \quad (1.6)$$

となることを示した[37、38]。ここで J は全角運動量量子数、 p_A^2 、 p_B^2 はそれぞれ偏極緩和

測定の標的原子 A と入射原子 B の分極率である。 ΔE_B は原子 B が仮想的に遷移する準位と基底状態とのエネルギー差、 v は衝突速度である。 $\langle \Delta E_B \rangle$ 、 $\langle v \rangle$ は ΔE_B 、 v の平均値を表す。また $\phi_j^{(x)}$ は偏極の状態に依存する定数で、例えば $x=1$ はオリエンテーション、 $x=2$ はアライメント緩和に対応する。 $\langle v \rangle \propto T^{1/2}$ であり、速度係数は平均断面積に $\langle v \rangle$ をかけて得られることから偏極緩和速度係数は $T^{3/10}$ に比例することになる。ここで T は気体の温度である。Wakabayashi、Seo らの実験と比較すると、 $2p_7$ 準位のアライメント緩和速度係数は 77 K より高温な領域で、 $T^{3/10}$ の近似と良く一致する。一方で、 $2p_2$ 準位に対する実験とは大きくずれる。

計算機技術の進展により、具体的な原子間ポテンシャルの下での原子衝突計算も盛んに行われるようになった。1985 年に Hennecart らは、ネオン原子の最外殻電子、ネオン 1 価イオン、ヘリウム原子からなる 3 体系から励起ネオン原子とヘリウム原子の 2 原子間モデルポテンシャルを構築した[39]。1997 年には同グループの Bahrim らが、[39]に比べて原子間距離のさらに小さな領域においてのモデルポテンシャルを構築し[40]、励起ネオン原子 $2p^5 3p$ 電子配置のすべての状態を取り入れた緊密結合法（以下多チャネル緊密結合法）と呼ばれる量子力学的な衝突断面積の計算手法により、 $J=1$ をもつ励起ネオン原子（ $2p_2$ 、 $2p_7$ 準位）のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和断面積、およびアライメント緩和速度係数を計算した[41]。その結果を Figure 1.4 (a) に破線で示す。当時の Wakabayashi らによって測定されていた実験値と比べると $2p_2$ 準位を標的原子とした実験に対しては誤差 20 % 以内で一致し、 $2p_7$ 準位を標的原子とした実験に対しては誤差 12 % 以内で一致した。またアライメント緩和速度係数の温度の増加に対する勾配は良く再現した。しかし、2002 年の Seo らが発表した実験に対しては、 $2p_2$ 、 $2p_7$ 準位を標的原子とした計算とともに 77 K 以下の温度に対して乖離し始め、 $2p_2$ 準位を標的原子とした計算では 40 K 以下になると温度に対して負の相関を見せる結果となった。2008、2009 年に Bahrim らは、原子間ポテンシャルを励起ネオン原子の分極率を考慮することで修正し、あらためて理論値を発表した[42、43]。その結果を Figure 1.4 (a) に実線で示す。ここでは、 $2p_7$ 準位を標的原子とした計算に対しては 77 K 以下で見られていた実験値との乖離が改善された。一方で、 $2p_2$ 準位を標的原子とした実験に対しては 77 K 以上で見られていた実験値との差は改善されたが、77 K 以下の低温領域での乖離に対しては顕著な改善は見られなかった。

また、Bahrim らは 2009 年の論文で、励起ネオン原子（ $2p_2$ 、 $2p_5$ 、 $2p_7$ 、 $2p_{10}$ 準位）のヘリウム原子衝突によるアライメント崩壊平均断面積を計算した。Carrington らの測定したアライメント崩壊平均断面積と得られた理論値を比較した結果、実験誤差の範囲内で一致した。

2010 年に、Bahrim らは励起ネオン原子（ $2p_2$ 、 $2p_5$ 、 $2p_7$ 、 $2p_{10}$ 準位）のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和断面積およびオリエンテーション緩和速度係数を計算した[44]。その結果を Figure 1.4(b) に実線で示す。理論値を励起ネオン原子（ $2p_2$ 準位）の実験

値と比較すると、35 K 以上の温度領域では 6 ~ 30 % の誤差で比較的良く一致した。しかし、それ以下の温度領域ではアライメント緩和で見られたのと同様、温度に対する負の相関が見られるようになり、実験結果と大きく乖離した。

また、2010 年の論文で Bahrim らはオリエンテーション緩和速度係数とアライメント緩和速度係数の比について報告している[44]。その結果を Figure 1.5 に実線で示す。Nimura らと Seo らが発表したアライメント緩和速度係数のオリエンテーション緩和速度係数に対する値と比較すると、300 K で誤差以内で一致し、77 K 以下の実験値とは整合していない。また、実験値ではオリエンテーション緩和速度係数がアライメント緩和速度係数に比べて全ての実験点で大きい一方、理論値は 55 K を境に大小が逆転している。

Omont、Wang らはオリエンテーション緩和平均断面積のアライメント緩和平均断面積に対する比を示した[37、38]。その結果は温度によらず 5/3 になる。緩和速度係数は緩和断面積に $\langle v \rangle$ をかけて得られることから、断面積の比と、緩和速度係数の比は等しい値になる。そこで、Omont、Wang らによる断面積の比を Figure 1.5 に破線で示す。この比の値は Nimura らと Seo らの実験から求まる比を実験誤差の範囲内で良く再現する。

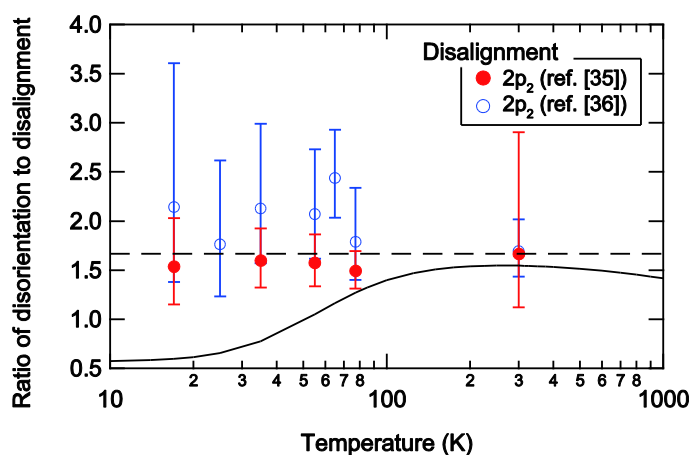


Figure 1.5 励起ネオン原子（2p₂ 準位）のアライメント緩和速度係数に対するオリエンテーション緩和速度係数の比。二点鎖線は Omont、Wang らによる理論値 [37、38]、実線は Bahrim らによる理論値[44]。実験点について[35]、[36]のアライメント緩和速度係数に基づく値を示す。

1.7 偏極緩和計測の意義と本研究の目的

Bahrim らによって励起ネオン原子 ($2p_2$, $2p_5$, $2p_7$, $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和速度係数およびオリエンテーション緩和速度係数が計算されたが、 $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位に対して測定がなされておらず、オリエンテーション緩和速度係数に対しては $2p_5$ 、 $2p_7$ 、 $2p_{10}$ 準位に対する報告がない。

$2p_2$ 準位で見られた理論と実験の不一致がこの準位のみに見られることかどうかは分かっていない。また、準位によって異なる偏極緩和速度係数の温度に対するべき依存性、アライメント緩和速度係数とオリエンテーション緩和速度係数の比に対して既存の理論計算がどの程度信頼できるのかを評価するため、本論文では、これまでに測定がなされていない励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和、オリエンテーション緩和観測を行う。

また、(1.6)式で示したように Omont、Wang らは偏極緩和断面積は入射原子の分極率の $2/5$ 乗に依存することを示した。そこで、励起アルゴン原子($2p_2$ 準位)のヘリウム、ネオン、アルゴン原子衝突によるアライメント緩和観測を行い、入射原子の分極率に対する依存性を評価し、Omont、Wang らの理論との比較を行う。

1.8 本論文の構成

本論文は 7 章からなる。

第 2 章では、本論文を読み進めるうえで必要となる基礎事項について述べる。2.1 節では衝突断面積と緩和速度係数の関連について述べる。2.2 節では原子から放射される光の放射確率や放射強度の角度依存性について記述する。2.3 節では密度行列を用いた原子のポピュレーションと偏光の取り扱いについて述べる。2.4 節ではふく射再吸収によるポピュレーションと偏極の緩和について述べる。

第 3 章では、励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和観測に関して述べる。3.1 節で LIF による実験法について述べ、3.2 節では実験結果の解析を行う。3.3 節ではふく射再吸収の評価法について述べる。

第 4 章では、励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のヘリウム、ネオン、アルゴン原子衝突によるアライメント緩和観測について述べる。

第 5 章では励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和観測について述べる。5.1 節では実験方法について述べ、5.2 節で、実験結果の解析について述べる。

第 6 章では、第 3、4、5 章で得た偏極緩和速度係数に関して考察する。6.1 節で励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) の偏極緩和速度係数の温度依存性について Bahrim、Omont、Wang らの理論値との比較を行った後、6.2 節ではオリエンテーション緩和速度係数のアライメント緩和速度係数に対する比について考察する。6.3 節では励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準

位) のアライメント緩和に関して、温度依存性と入射原子依存性について、Wang らの理論と比較する。

第 7 章では、本論文の総括を行う。

第 2 章 基礎事項

本章では、以後の章を理解するために必要な基礎事項について記述する。

2.1 断面積と緩和速度係数

弾性衝突断面積と非弾性衝突断面積の和は全衝突断面積と呼ばれる。全衝突断面積を σ とすると、

$$\sigma = \sigma_{\text{el}} + \sum_i \sigma_i \quad (2.1)$$

と書くことができる。ここで σ_{el} は弾性衝突、 σ_i は様々な非弾性衝突の衝突断面積である。全衝突断面積に対して、 σ_{el} や σ_i は部分断面積と呼ばれる。非弾性衝突としては、例えば、励起過程や電離過程、励起移行過程、組み換え反応などがあり、それぞれの過程に対する部分断面積は励起断面積、電離断面積、励起移行断面積、反応断面積などと呼ばれる。一般に、衝突断面積は衝突速度に依存する。

原子衝突による緩和速度 k は、入射原子数密度を N とすると、その数密度変化率である緩和速度係数 K_c を用いて

$$k = K_c N \quad (2.2)$$

と書ける。

緩和速度係数は衝突する 2 つの原子（以下衝突原子対と呼ぶ）の相対速度の大きさ v の分布関数を $f(v)$ とすると、ある衝突過程 C の衝突断面積 σ_c と

$$K_c = \int v \sigma_c(v) f(v) dv \quad (2.3a)$$

の関係にある[45]。

また(2.3a)は衝突原子対の衝突エネルギーの関数として、

$$K_c = \int \frac{1}{\mu} \sigma_c(E) f(E) dE \quad (2.3b)$$

とも書ける。ここで μ は衝突原子対の換算質量である。

気体が熱平衡状態にあれば、原子の相対速度分布は Maxwell 分布に従う。Maxwell 速度分布関数は、

$$f(v, T) = 4\pi v^2 \left(\frac{\mu}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \exp \left(-\frac{\mu v^2}{2k_B T} \right) \quad (2.4a)$$

または運動エネルギーの分布関数として

$$f(E, T) = 4\sqrt{\frac{\mu}{2\pi}} \left(\frac{1}{k_B T}\right)^{3/2} E \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right)$$

(2.4b)

である[45]。ここで、 k_B 、 T はそれぞれボルツマン定数、気体の温度である。また、このとき平均速度 $\langle v \rangle$ は

$$\langle v \rangle = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi\mu}} \quad (2.5)$$

となる。

2.2 原子から放射される光

ここでは原子から放射される偏光と偏光成分の光の強度について考える。

2.2.1 磁気副準位間の遷移確率

原子が $J = J_u$ 、 $M = M_u$ の上準位から $J = J_l$ 、 $M = M_l$ の下準位にふく射を伴って遷移する場合を考える。ここでは電気双極子遷移のみを考える。電気双極子遷移の選択則は $\Delta J = 0, \pm 1$ および $\Delta M (\equiv M_u - M_l) = 0, \pm 1$ である。ただし $J_u = 0 \leftrightarrow J_l = 0$ 遷移、 $\Delta J = 0$ のとき、 $M_u = 0 \leftrightarrow M_l = 0$ 遷移は禁止される。Figure 2.1 に本研究で用いる $J_u = 1 \leftrightarrow J_l = 0, 1, 2$ の遷移に対応する Kastler ダイアグラムを示す。Kastler ダイアグラムは磁気副準位間の遷移確率の比を図示したものである[3]。磁気副準位間の遷移確率は Winger の 3-j 記号 $\begin{pmatrix} J_u & 1 & J_l \\ -M_u & -q & M_l \end{pmatrix}$ [46] を用いて、

$$A = \left| \frac{g_u}{g_l} \frac{\omega^3 e^2}{\pi \hbar c^3 \epsilon_0} d_{J_u J_l} \begin{pmatrix} J_u & 1 & J_l \\ -M_u & -q & M_l \end{pmatrix} \right|^2 \quad (2.6)$$

と書ける[47]。 $d_{J_u J_l}$ は M の値によらない遷移双極子の行列要素である。ここで、 M の値によらない行列要素を換算行列要素と呼ぶ[46]。また、 $q = +1, 0, -1$ を持つ遷移が放出する光はそれぞれ古典的な振動双極子、すなわち量子化軸周りに左回りの振動双極子、量子化軸方向の振動双極子、右回り振動双極子が放出する光と考える。

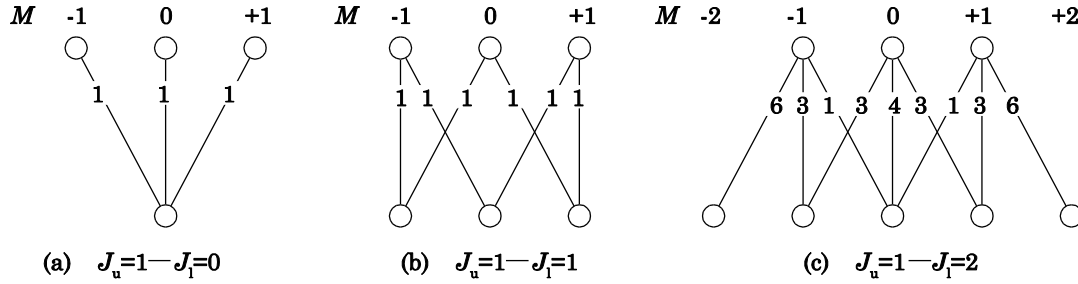


Figure 2.1 $J_u = 1 - J_l = 0, 1, 2$ 遷移に対応する Kastler ダイアグラム。

2.2.2 放射強度の角度分布および偏光

$\Delta M = -1, 0, +1$ となる電気双極子遷移に伴う光はそれぞれ、 σ^+ 、 π 、 σ^- 光と呼ばれる。電気双極子放射強度の角度分布は、 π 、 σ^+ 、 σ^- 光に対してそれぞれ

$$I_\pi(\theta) \propto \sin^2 \theta$$

$$I_{\sigma^+, \sigma^-}(\theta) \propto \frac{1 + \cos^2 \theta}{2} \quad (2.7)$$

と書くことができる[48]。ここで θ は放射方向の極角である。Figure 2.2 に π 、 σ 光強度の θ 分布を示す。ここで σ 光強度は σ^+ 、 σ^- 光強度の和である。Figure 2.2 中では θ 方向に伸びた矢印の長さが、 π 光の θ 方向への電気双極子放射強度に相当する。

π 光は z 軸と垂直な方向から観測した際には、 z 軸と平行な直線偏光として観測される。一方、 σ^+ 、 σ^- 光は z 軸と垂直な方向から観測した際には、 z 軸と垂直な直線偏光として観測される。また、 z 軸の正の方向から観測した際には、それぞれ左回り、右回りの円偏光として観測され、 z 軸の負の方向から観測した際には、それぞれ右回り、左回りの円偏光として観測される[48]。

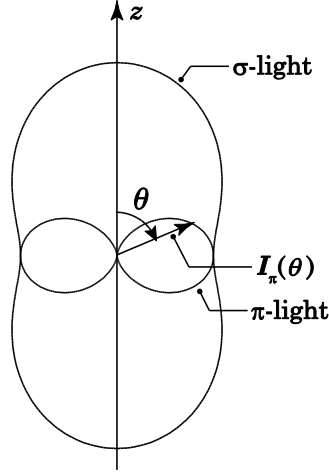


Figure 2.2 電気双極子放射の π 、 σ 光強度の角度分布。

2.3 密度行列と状態多極子

この節では、1.5 節で述べた偏極した原子集団の速度方程式および 2.2 節で述べた光の偏光成分を密度行列および状態多極子と呼ばれる記法を用いて記述する。状態多極子による記述は磁場などによる定常摂動下の時間発展が簡便になるという利点がある[49]。

2.3.1 密度行列と状態多極子の定義

密度行列 $\rho(J)$ は、その対角項 $\langle m | \rho(J) | m \rangle$ (以下 ρ_{mm}) が磁気副準位 $M = m$ のポピュレーションを、非対角項 $\langle m' | \rho(J) | m \rangle$ (以下 $\rho_{m'm}$) が $M = m$ と $M = m'$ 間のコヒーレンスを表す正方行列である。 $J = 1$ の原子の密度行列を書き下せば、

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{+1+1} & \rho_{+10} & \rho_{+1-1} \\ \rho_{0+1} & \rho_{00} & \rho_{0-1} \\ \rho_{-1+1} & \rho_{-10} & \rho_{-1-1} \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

となる。1.5 節の場合では、 n_{+1} 、 n_0 、 n_{-1} がそれぞれ ρ_{+1+1} 、 ρ_{00} 、 ρ_{-1-1} に対応する。

密度行列は既約テンソルを用いて

$$\rho(J) = \sum_{xq} \rho_q^x(J) T_q^x(J) \quad (2.9)$$

と展開できる。ここで、 $T_q^x(J)$ はランク x 、成分 q の既約テンソル演算子である。また、 $\rho_q^x(J)$ は状態多極子と呼ばれ、密度行列の要素と

$$\rho_q^x(J) = \sum_{mm'} (-1)^{J-m'} \langle JmJ-m' | xq \rangle \rho_{m'm} \quad (2.10)$$

の関係にある[49]。 $\langle JmJ-m' | xq \rangle$ は Clebsch—Gordan 係数と呼ばれる[46]。 $J = 1$ に対

して状態多極子を具体的に書き下すと、

$$\begin{aligned}\rho_0^0 &= \frac{(\rho_{11} + \rho_{00} + \rho_{-1-1})}{\sqrt{3}} \\ \rho_0^1 &= \frac{(\rho_{11} - \rho_{-1-1})}{\sqrt{2}}, \quad \rho_{\pm 1}^1 = \mp \frac{(\rho_{10} + \rho_{0-1})}{\sqrt{2}} \\ \rho_0^2 &= \frac{(\rho_{11} - 2\rho_{00} + \rho_{-1-1})}{\sqrt{6}}, \quad \rho_{\pm 1}^2 = \mp \frac{(\rho_{10} - \rho_{0-1})}{\sqrt{2}}, \quad \rho_{\pm 2}^2 = \pm \rho_{1-1}\end{aligned}\tag{2.11}$$

となる。磁気副準位間にコヒーレンスがなければ、状態多極子は $q=0$ の成分のみが値を持つ。 ρ_0^0 、 ρ_0^1 、 ρ_0^2 をそれぞれポピュレーション、オリエンテーション、アライメントと呼ぶ。

系に外部からの摂動がないとき、状態多極子の各 q 成分は互いに独立に緩和し、その時間発展は

$$\frac{d\rho_q^x(J)}{dt} = -(\Gamma + \gamma_q^x(J))\rho_q^x(J) \quad (\text{ただし } \gamma_0^0(J) = 0)\tag{2.12}$$

と表される。系が等方的な環境にあるときには、 γ_q^x は q の値によらない[49]。そこで、等方的な環境に対しては γ_q^x を改めて γ_x と書くことにする。1.5 節で考えた速度方程式と対応させると、

$$\begin{aligned}\frac{d\rho_0^0}{dt} &= -\Gamma\rho_0^0 \\ \frac{d(\rho_0^2/\rho_0^0)}{dt} &= -3k_{01}(\rho_0^2/\rho_0^0) \\ \frac{d(\rho_0^1/\rho_0^0)}{dt} &= -(2k_{-11} + k_{01})(\rho_0^1/\rho_0^0)\end{aligned}\tag{2.13}$$

となり、 $\gamma_0 = \Gamma$ 、 $\gamma_2 = 3k_{01}$ 、 $\gamma_1 = 2k_{-11} + k_{01}$ となる。ここで ρ_0^0 をポピュレーション、 ρ_0^2/ρ_0^0 を規格化アライメント、 ρ_0^1/ρ_0^0 を規格化オリエンテーションと呼ぶことにする。ポピュレーション、規格化アライメント、規格化オリエンテーションの減衰の時定数をそれぞれポピュレーション緩和速度、アライメント緩和速度、オリエンテーション緩和速度と呼ぶことにする。

2.3.2 偏光成分の蛍光強度

全角運動量量子数が J_u の上準位から J_l の下準位への遷移に伴う、単位偏光ベクトル \mathbf{e} をもつ蛍光の単位立体角あたりの蛍光強度は、

$$I(\mathbf{e}) = C_D \text{Tr} \left(\sum_{xq} D_q^x(J_u, J_l; \mathbf{e}) T_q^x(J_u) \rho_q^x(J_u) \right)\tag{2.14}$$

で与えられることが分かっている[50]。ここで、 C_D は検出効率と呼ばれ、

$$C_D = \frac{\omega_{ul}^4}{2\pi c^3 R^3} \quad (2.15)$$

である。 c は光速、 ω_{ul} は遷移の際に放出される光の角周波数、 R は光源である原子と検出器の間の距離である。また、 $D_q^x(J_u, J_l; \mathbf{e})$ は検出演算子と呼ばれ、

$$D_q^x(J_u, J_l; \mathbf{e}) = |d_{J_u J_l}|^2 (-1)^{J_u + J_l + 1} \begin{Bmatrix} x & 1 & 1 \\ J_l & J_u & J_u \end{Bmatrix} \phi_q^x(\mathbf{e}) \quad (2.16)$$

である。 $\begin{Bmatrix} x & 1 & 1 \\ J_l & J_u & J_u \end{Bmatrix}$ はWignerの6- j 記号と呼ばれる[51]。また、 $\phi_q^x(\mathbf{e})$ は光子の状態多極子である。ここで、 z 軸を量子化軸にとると、0~2階の各 q 成分に対して

$$\begin{aligned} \phi_0^0(\mathbf{e}) &= \frac{1}{\sqrt{3}} \\ \phi_0^1(\mathbf{e}) &= \frac{i}{\sqrt{2}}(\alpha\beta^* - \alpha^*\beta), \quad \phi_{\pm 1}^1(\mathbf{e}) = \frac{1}{2}(\alpha\gamma^* - \alpha^*\gamma) \mp \frac{i}{2}(\beta\gamma^* - \beta^*\gamma) \\ \phi_0^2(\mathbf{e}) &= \frac{1}{\sqrt{6}}(1 - 3|\gamma|^2), \quad \phi_{\pm 1}^2(\mathbf{e}) = \pm \frac{1}{2}(\alpha\gamma^* + \alpha^*\gamma) - \frac{i}{2}(\beta\gamma^* + \beta^*\gamma) \\ \phi_{\pm 2}^2(\mathbf{e}) &= \frac{1}{2}(|\beta|^2 - |\alpha|^2) \pm \frac{i}{2}(\alpha\beta^* + \alpha^*\beta) \end{aligned} \quad (2.17)$$

で与えられることが分かっている[50]。ここで偏光ベクトルを $\mathbf{e} = \alpha\mathbf{e}_x + \beta\mathbf{e}_y + \gamma\mathbf{e}_z$ で与えた。 \mathbf{e}_x 、 \mathbf{e}_y 、 \mathbf{e}_z はそれぞれ x 、 y 、 z 方向の単位ベクトルである。

2.4 ふく射再吸収

ある原子が放出したふく射は検出器に到達するまでに、周辺の気体に吸収され再放出することがある。この過程をふく射再吸収と呼ぶ[48、52、53]。この節では、ふく射再吸収が観測に与える影響について述べる。

2.4.1 ふく射再吸収による励起原子の見かけの寿命の変化

Figure 2.3(a)のように、 y 軸方向に無限の長さを持つ円筒を考える。この中には気体が封入されており、気体を構成する原子はFigure 2.3 (b)のような2準位系の準位構造を持つとしよう。ある時刻 t_0 に円筒内のある場所 p_0 に励起原子が生成されたとする。その原子はEinsteinのA係数の逆数を寿命として持ち、ある時刻 t_1 に電気双極子放射を伴って脱励起する。 p_0 で

放射された光子が p_1 で吸収された場合、 p_1 で光子を吸収した原子は上準位に励起され、再びEinsteinのA係数によって決まる一定時間この準位に留まった後、光子を放出し、検出器で検出される。従ってふく射再吸収が起こると、見かけの寿命は長くなる。

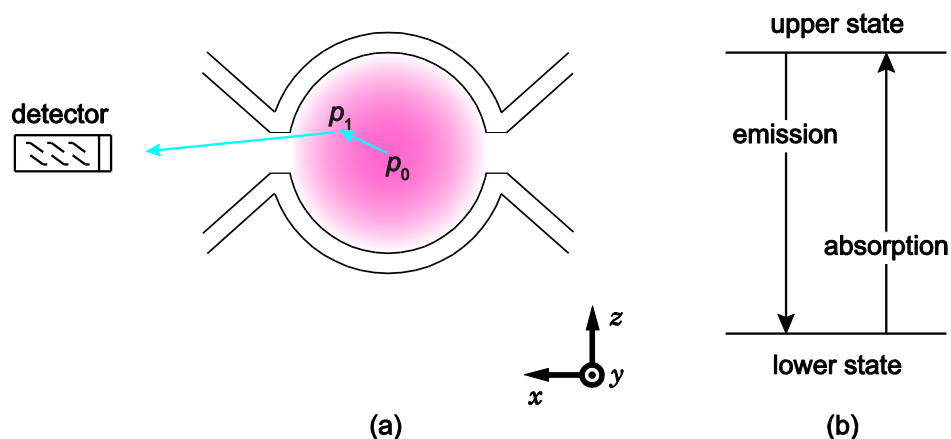


Figure 2.3 ふく射再吸収の概念図。

2.4.2 ふく射再吸収による偏極緩和

ふく射再吸収が起こると、偏光が緩和すること知られている。 $J_u = 1$ の原子に対して、直観的な理解のために、Figure 2.4 に示した Kastler ダイアグラムを用いて説明する。

t_0 に上準位の原子集団が $M_u = 0$ に完全に偏極した状態を考える。 $J_u = 1 \rightarrow J_l = 2$ の遷移を考えよう。Figure 2.4 (a) のように、下準位の $M_l = -1$ への遷移が起こり、 z 軸方向に放射が起こったとする。するとふく射吸収過程は、Figure 2.4 (b) のように $\Delta M = -1$ を満たす3つの遷移、 $M_u = -1 \leftarrow M_l = -2$ 、 $M_u = 0 \leftarrow M_l = -1$ 、 $M_u = +1 \leftarrow M_l = 0$ で起こりうる。ここで示した3つの遷移はKastlerダイアグラムに従って、6 : 3 : 1の確率比で起こる。このことにより、 $M_u = 0$ にあったポピュレーションが、 $M_u = -1$ や $M_u = +1$ に移行する。すなわちアラメントが緩和する。以上がふく射再吸収による偏極緩和のメカニズムの一つである。

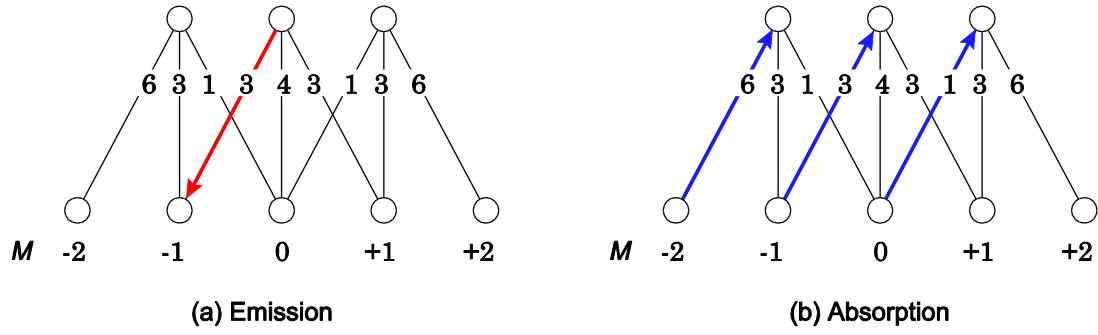


Figure 2.4 (a) $M=0$ に整列した原子からのふく射の放出と (b) 下準位のふく射の吸収時を表した Kastler ダイアグラム。

一方、 $J_u = 1 \rightarrow J_l = 0$ の遷移では上記のメカニズムは働かない。そこで、次に z 軸方向に振動している電気双極子によるふく射を考える。この電気双極子が放出する電場を \mathbf{E}_{far} とすると、

$$\mathbf{E}_{\text{far}}(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(-\frac{\ddot{\mathbf{p}}(t_0)}{c^2 r} + \frac{\mathbf{r}(\mathbf{r} \cdot \ddot{\mathbf{p}}(t_0))}{c^2 r^3} \right) \quad (2.18)$$

である[54]。ここで \mathbf{p} は電気双極子モーメントベクトルであり、 \mathbf{r} は電気双極子を原点に置いた時の大きさ r をもつ位置ベクトルである。また ϵ_0 は真空中の誘電率である。ふく射強度は電場振幅の2乗に比例する。電場を x, y, z 各方向の成分に分けて、それらの2乗を全立体角にわたって積分することにより、ふく射強度の x, y, z 各方向の成分 I_x, I_y, I_z の比が

$$I_x : I_y : I_z = 1 : 1 : 8 \quad (2.19)$$

と得られる。このことより、光学的に厚い極限で、ふく射が起こってから放出された光子の再吸収が生じると、 I_z の時間変化は I_x, I_y を用いて

$$\frac{dI_z}{dt} = -AI_z + \frac{8}{10}AI_z + \frac{1}{10}AI_x + \frac{1}{10}AI_y \quad (2.20)$$

と書くことができる。ここで A は Einstein の A 係数である。 z 軸に対称な偏光の程度、すなわち縦アライメントを表わすパラメータとして $\Delta I = I_z - \frac{1}{3}(I_x + I_y + I_z)$ を導入すると、

$$\frac{d\Delta I}{dt} = -\frac{3}{10}A\Delta I \quad (2.21)$$

と表される。これはふく射再吸収によるアライメント緩和速度が $(3/10)A$ であることを示している。このように、光学的に厚い極限でのふく射再吸収による偏極の減衰の時定数を偏極緩和因子と呼ぶ。

ふく射が角度分布をもつことにより生じるこの偏極緩和のメカニズムは $J_u = 1 \rightarrow J_l = 2$ や $J_u = 1 \rightarrow J_l = 1$ の遷移や円偏光に対しても働く。また上記2種のメカニズムはオリエンテーション緩和に対しても同様に生じる。

D'yakonovとPerel'は偏極緩和因子の公式を導いている[55]。Table 2.1に $J_u=1$ と $J_l=0, 1, 2$ 間の遷移に対する偏極緩和因子をまとめた。

Table 2.1 $J_u=1$ - $J_l=0, 1, 2$ 間の遷移に対する偏極緩和因子

Lower level (J_l)	Disalignment factor	Disorientation factor
0	3/10	1/2
1	33/40	7/8
2	993/1000	7/8

光学的厚さが有限な場合には、解析的な取扱いは困難である。Seo、Nimuraらは、自己吸収法と量子力学に基づいたふく射再吸収による偏極緩和を計算するMonte Carloシミュレーションモデルによって、ふく射再吸収による偏極緩和を定量化する方法を構築した[52、53]。このMonte Carloシミュレーションによる計算では、光学的に厚い条件で計算したふく射再吸収による偏極緩和が、D'yakonovとPerel'により導かれた偏極緩和因子の公式に漸近することが確かめられた。このMonte CarloシミュレーションモデルはAppendix Aで説明する。

第3章 励起ネオン原子のアライメント緩和観測

1章で述べたように、1997年に Bahrim らは、励起ネオン原子とヘリウム原子の2原子間モデルポテンシャルを構築し、緊密結合法により、励起ネオン原子 ($2p_2$ 、 $2p_7$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和速度係数を計算した[41]。Seo らは、液体窒素温度以下の低温領域で Bahrim の理論値が実験値を再現しないことを発表した[35]。その後、Bahrim らは 2008、2009 年に原子間ポテンシャルを修正し、あらためて計算を行った[42、43]。ここでは従来測定されていた $2p_2$ 準位と $2p_7$ 準位に加えて、同じ全角運動量量子数をもつ $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位に対する理論値も発表された。とりわけ $2p_5$ 準位に対してはポテンシャルの微妙な変化に対してアライメント緩和速度係数は敏感に変化した。一方、 $2p_{10}$ 準位のアライメント緩和速度係数は、再構築されたポテンシャルを用いても従来のポテンシャルを用いた場合とほとんど変わらなかった。

本章では、これまで観測されていない励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) に対して Figure 1.2(a) で示したアライメント緩和を観測するため、直線偏光したパルスレーザー光を用いてポピュレーションが $M = 0$ に整列した原子を励起し、その状態からの直線偏光分離した蛍光の時間発展を観測する。

3.1 LIF 実験装置

実験装置の配置の概略図を Figure 3.1 に示す。デカルト座標系(x, y, z)を図のように定義する。レーザー光の偏光方向に量子化軸 (z 軸) をとる。

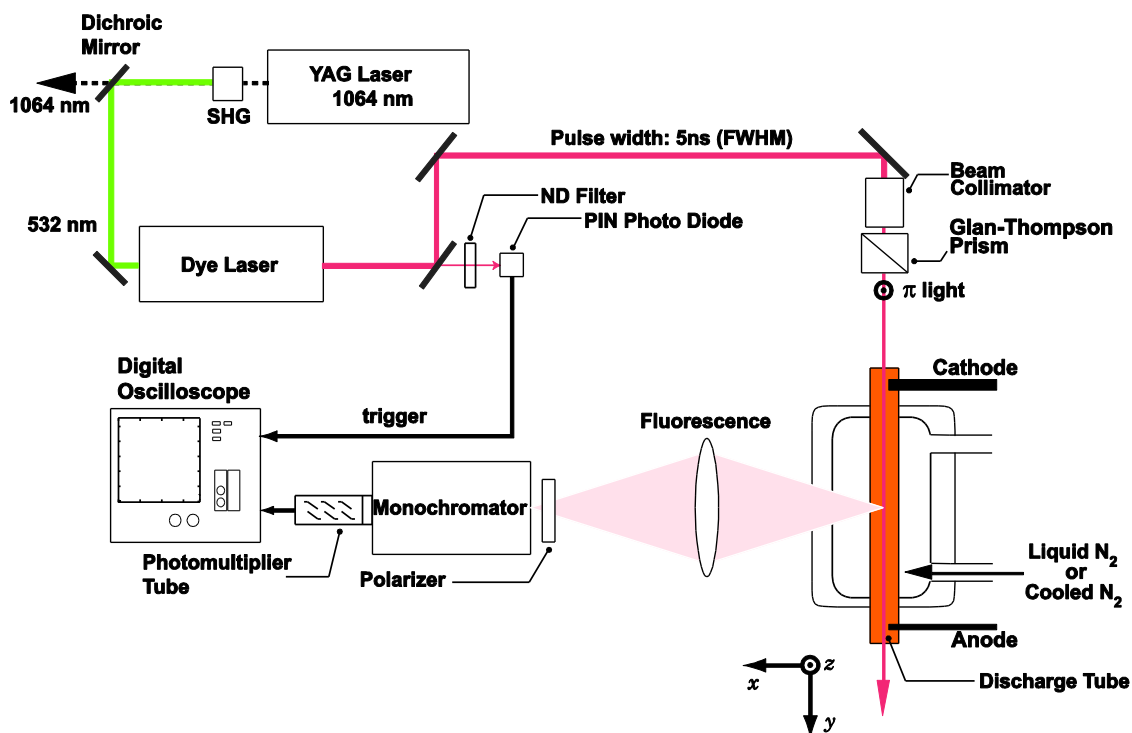


Figure 3.1 実験装置の概略図。

励起光源

パルス発振 Nd:YAG レーザー (Spectra Physics/Quanta Ray、GCR-100) の 2 倍波 (532 nm) による励起で波長可変のパルス色素レーザー (ELTO、LT1233) を発振させた。パルスレーザー光は放電によって生じたネオン原子の $1s_3$ 準安定状態原子 ($J=0$) から測定対象とする $2p_5$ または $2p_{10}$ 準位を励起した。レーザー色素には、ネオン原子の $2p_5$ 準位 ($J=1$) への励起 ($\lambda = 626.6$ nm) に対してはメタノールに溶かした DCM を、ネオン原子の $2p_{10}$ 準位 ($J=1$) への励起 ($\lambda = 724.5$ nm) に対してはメタノールに溶かした LDS751 を用いた。レーザーパルスの繰り返し周波数は 50 Hz であり、レーザーパルス幅の半値全幅は 5 ns であった。色素レーザー光は誘電体多層膜ミラー ($\lambda = 632.8$ nm において $R = 90\%$) の透過光と反射光

の2つの光路に分けた。透過光を、ガラス板に反射させ、さらにNDフィルターを通して強度を弱めた後、Si PIN フォトダイオード (Hamamatsu, S3883) に入射した。一方、反射光はビームコリメータを用いて平行光にし、グラントムソンプリズムを通して z 方向に直線偏光させた。アパーチャを用いてレーザー光のビーム直径を約 1 mm とした後、放電管に入射した。励起レーザー光のスペクトル幅は 0.1 nm であり、励起遷移の吸収線幅より十分に広い。従って、レーザー励起される上準位の速度分布下準位と同一であると仮定した。なお、下準位であるネオン原子の $1s_3$ 準位 ($J=0$) の温度は放電層の外壁の温度とほぼ同じであることが、 $2p_7 (J=1) \leftarrow 1s_3$ 遷移線 ($\lambda = 653.3$ nm) の半導体レーザーによる吸収スペクトル測定によって確かめられている[21]。

放電管、放電気体と温度制御

本実験で用いた熔融石英製の三重構造の放電管 (以下、三重管と記す) の概略図をFigure 3.2に示す。(a)、(b)、(c)図はそれぞれ放電管をFigure 3.1で定義した y - x 平面、 z - y 平面、 x - z 平面に対して垂直方向から見た図である。三重管は中央から順に希ガスの放電を起こす放電層、温度制御層、温度制御層と外気を断熱するための真空層となっている。

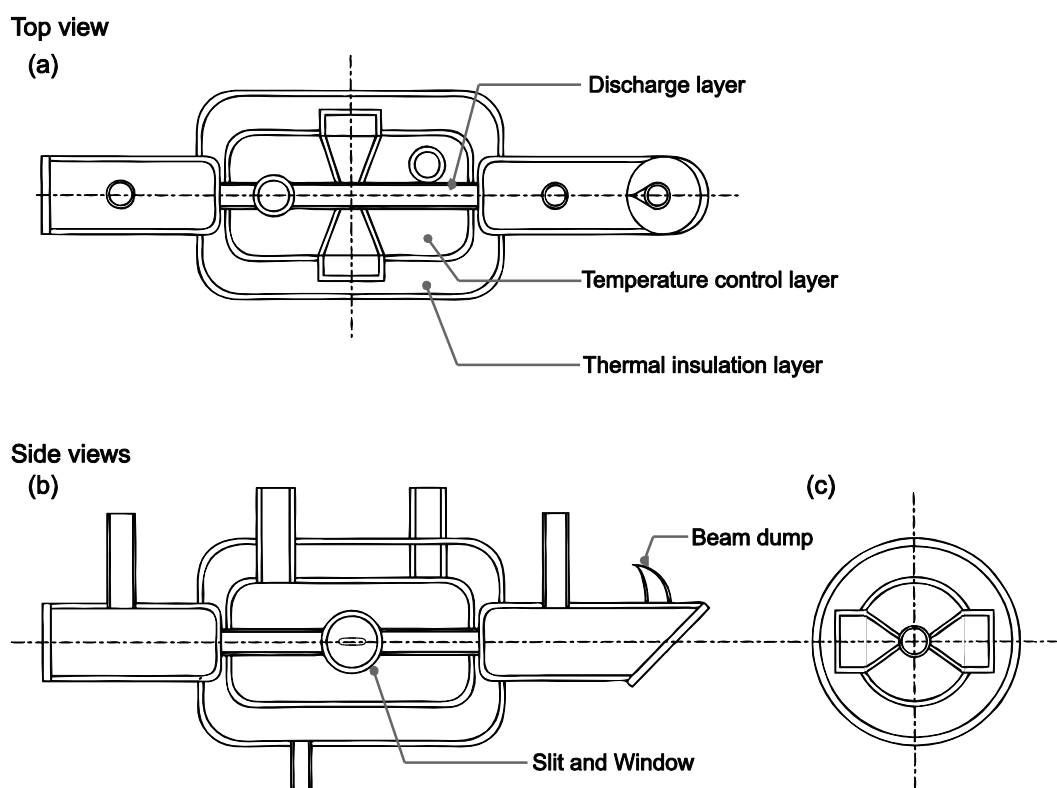


Figure 3.2 三重管の構造。(a)上面図および(b)、(c)側面図。

放電層は内径5 mm、長さ190 mmの円柱であり、放電層の両側には幅2 mm、長さ10 mmのスリットが付いている。このスリットの片側を観測用の窓とした。内部は放電気体で満たした。放電層は放電気体を封入する前、ロータリーポンプ及び油拡散ポンプにより約 3×10^{-4} Paまで排気した。さらに、放電層内への不純物の混入をできるだけ防ぐために、液体窒素による冷却トラップを設置した。放電層の外部、スリット近くに、金+0.07%鉄 対 クロメル熱電対を設置し、熱電対の起電力をデジタルエレクトロメータ（ADVANTEST、R8240）により測定し、放電管温度のモニタとした。放電層の温度を77 Kとしたときは温度制御層に液体窒素を満たした。77 Kから294 Kの間の温度に対しては、液体窒素で冷却した窒素気体を流入させた。室温付近の294 Kに対しては温度制御層を、室温の空気にさらした。測定中、測定温度の変動は ± 2 K以内であった。放電気体の圧力はセラミックキャパシタンスマノメータ（ULVAC、CCMT-100）で測定した。放電電流は0.70 mAであった。レーザー光は(b)図左側から入射した。レーザー光の出口となる(b)図右側の窓の反射光の影響を除くために、ホルン型のビームダンプが取り付けられている。

測定系

放電層に取り付けられたスリットと窓を抜けた放電プラズマからの発光を両凸レンズ（ $f=75$ mm）で分光器（Nikon、G-250）の入口スリットに集光した。また分光器の前に偏光板を置き、光の z 軸方向に平行な成分（ π 光）と y 軸方向に平行な成分（ σ 光）に分離した。分光器の入口スリットは放電層に取り付けられたスリットに対して平行方向を向いており、スリットの幅、高さはそれぞれ0.5、5 mmであった。一方、出口スリットの幅、高さはそれぞれ1.0、20 mmであった。偏光板と分光器を通ったネオン原子 $2p_5$ ($J=1$) \rightarrow $1s_2$ ($J=1$) 遷移の発光（ $\lambda=671.7$ nm）、または $2p_{10}$ ($J=1$) \rightarrow $1s_4$ ($J=1$) 遷移の発光（ $\lambda=724.5$ nm）を光電子増倍管（Hamamatsu、H6780-02）に入射した。光電子増倍管からの出力電流は入力インピーダンス 50Ω のデジタルオシロスコープ（Agilent、DSO5054A）で計測した。デジタルオシロスコープの周波数帯域は500 MHz、サンプリング数は4 GS/sであった。デジタル信号は1024回、蓄積され、外部メモリに記録した。

上述したSi PINフォトダイオードからの出力電圧信号をデジタルオシロスコープ（Agilent、DSO5054A）のトリガーとするとともに、励起光源強度のモニタとしても用いた。Si PINフォトダイオードの出力電流—電圧変換インピーダンスは 50Ω であった。

π 光と σ 光強度の偏光感度比を決定するために、以下の実験を行った。励起レーザー光を x 軸方向に偏光させると、 y, z 軸方向に偏光する蛍光は対称性から無偏光になる。このときの π 光と σ 光の強度比を求めることで偏光感度校正を行った。測定系の偏光感度比を

$$(\pi\text{光感度}) / (\sigma\text{光感度})$$

と定義すると671.7 nmに対し1.65、724.5 nmに対し2.35であった。

3.2 実験結果

3.2.1 LIF 計測の解析

$2p_{10} \rightarrow 1s_4$ 遷移に対応する 724.5 nm の蛍光観測時の π 、 σ 偏光成分の時間発展の一例をそれぞれ Figure 3.3 (a-1)、(b-1) に示す。このときの放電条件は、気体温度 77 K、ネオンとヘリウムの原子数密度がそれぞれ 1.13×10^{22} 、 $4.72 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ であった。レーザー散乱光の大部分は π 成分として観測された。放電させずにレーザーを入射したときの π 、 σ 偏光成分の時間発展をそれぞれ Figure 3.3 (a-2)、(b-2) に示す。

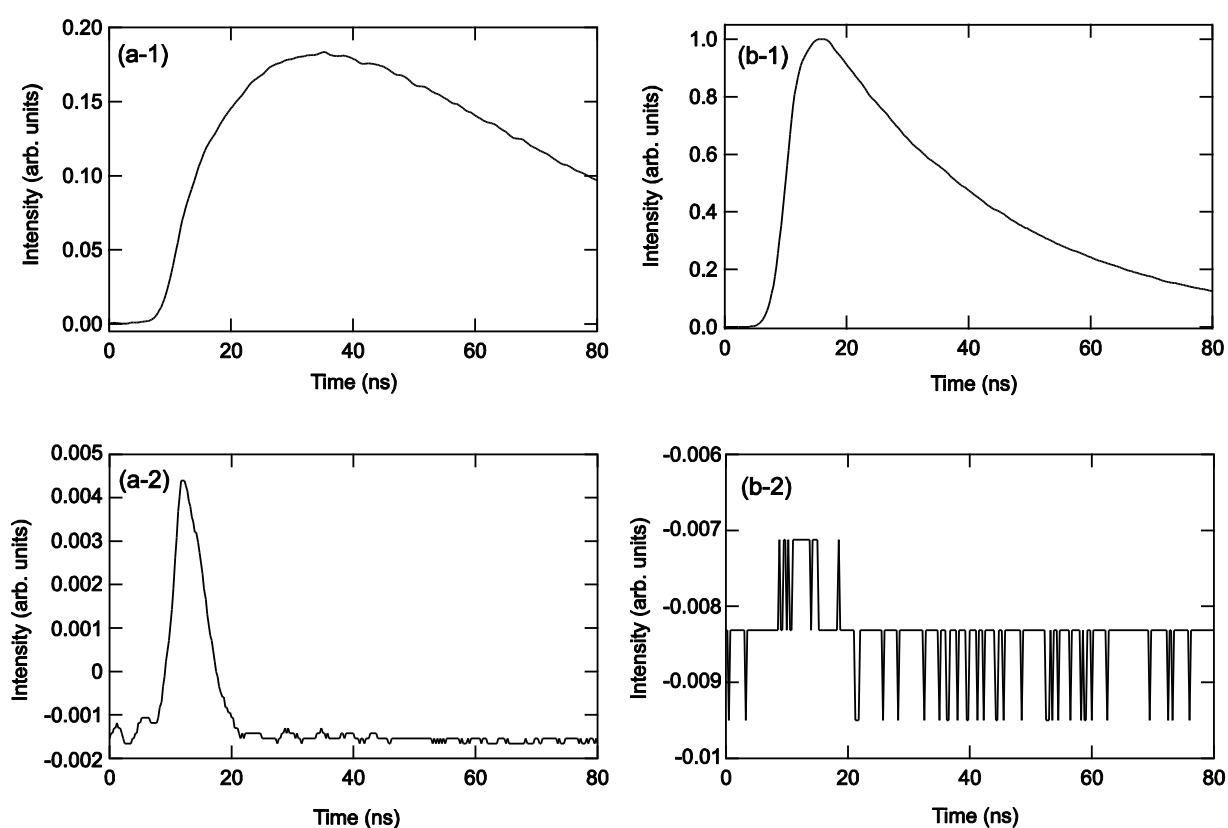


Figure 3.3 $2p_{10} \rightarrow 1s_4$ 準位間の遷移 ($\lambda = 724.5 \text{ nm}$) の蛍光観測時の (a-1) π 、(b-1) σ 偏光成分の時間発展の一例。放電気体の温度は 77 K であり、ネオン原子数密度とヘリウム原子数密度はそれぞれ 1.13×10^{22} 、 $4.72 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ であった。レーザー散乱光の (a-2) π 、(b-2) σ 偏光成分の時間発展。

レーザーの散乱光の影響を取り除くために、Figure 3.3 (a-1)、(b-1) で見られる信号強度から、Figure 3.3 (a-2)、(b-2) で見られる信号強度を差し引いた。この処理をしたデータからさらに、レーザー入射前の信号強度の平均値を取り、この平均値を放電による光とバックグラウンドノイズと決め差し引いた。さらにその結果を、偏光感度比で校正して、LIF の蛍光強度の時間発展を求めた。Figure 3.3 のデータをもとに計算した蛍光強度の時間発展を Figure 3.4 に示す。

また、分光器の設定波長をレーザー光の波長に合わせて、レーザーの散乱光を測定した。このレーザー散乱光の時間発展を併せて Figure 3.4 に示す。

Figure 3.4 に示した σ 光、 π 各偏光成分の時間発展について、 σ 光成分が π 光成分よりも大きく、立ち上がり時間は π 光より σ 光の方が早いことが分かる。Figure 3.5 に励起時と観測時のカストラーダイアグラムを示す。パルスレーザー光による励起は $J=0$ をもつ下準位から $J=1$ をもつ上準位への π 偏光励起である。そのため励起直後の $2p_{10}$ 準位は $M=0$ にのみポピュレーションを持つ。従って、 $J=1$ をもつ下準位への遷移の際は、Figure 3.5(b) から分かるように σ 光のみが観測される。時間の経過とともに原子衝突やふく射再吸収により $M = \pm 1$ に占有密度が移行すると π 光が観測されるようになる。

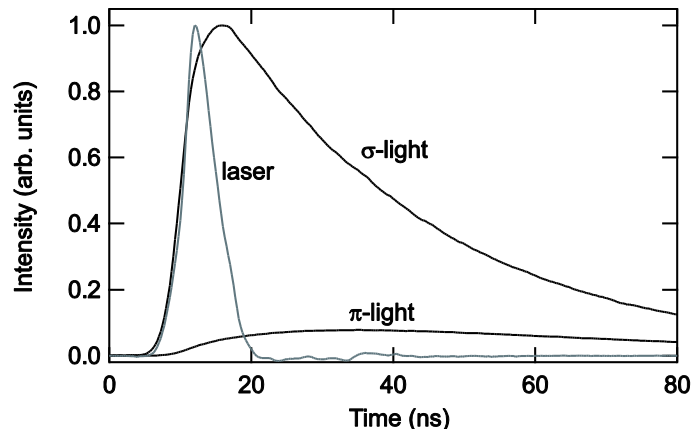


Figure 3.4 Figure 3.3 の信号強度の時間発展から求めた $2p_{10} \rightarrow 1s_4$ 遷移 ($\lambda = 724.5 \text{ nm}$) の蛍光強度の各偏光成分の時間発展の一例。

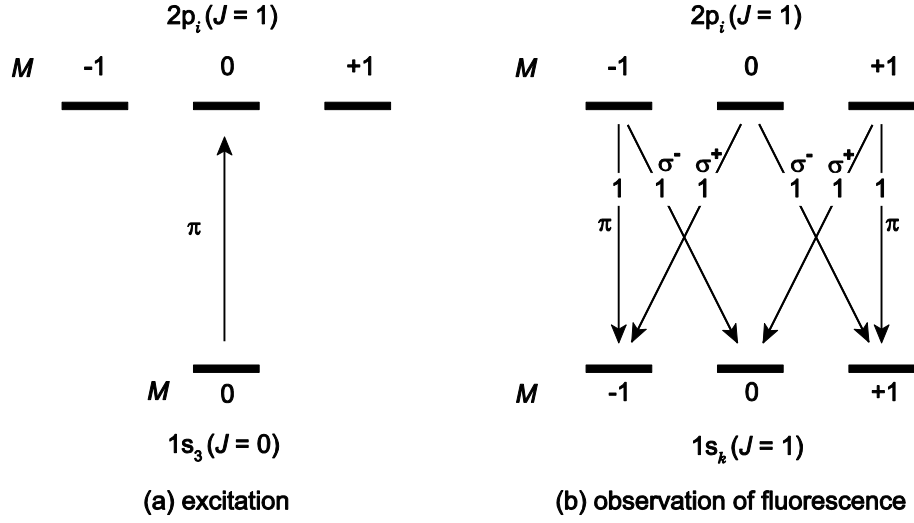


Figure 3.5 (a) 励起時と(b) 観測時のカストラーダイアグラム。

π 、 σ 各偏光成分の単位偏光ベクトルはそれぞれ \mathbf{e}_z 、 \mathbf{e}_y である。それぞれの偏光に対する光子の状態多極子のうち、0でないものは、 π 偏光に対して、

$$\phi_0^0(\mathbf{e}) = \frac{1}{\sqrt{3}} \quad \phi_0^2(\mathbf{e}) = -\frac{2}{\sqrt{6}} \quad (3.1)$$

σ 偏光に対して、

$$\phi_0^0(\mathbf{e}) = \frac{1}{\sqrt{3}} \quad \phi_0^2(\mathbf{e}) = \frac{1}{\sqrt{6}} \quad \phi_{\pm 2}^2(\mathbf{e}) = \frac{1}{2} \quad (3.2)$$

となる。(2.14)、(2.16)、(3.1)、(3.2) 式から、 π 、 σ 各偏光成分の蛍光強度 I_π 、 I_σ は、

$$\begin{aligned} I_\pi(t) &= C_D |d_{J_u J_l}|^2 \left(\frac{1}{3\sqrt{3}} \rho_0^0(t) + \frac{1}{3\sqrt{6}} \rho_0^2(t) \right) \\ I_\sigma(t) &= C_D |d_{J_u J_l}|^2 \left(\frac{1}{3\sqrt{3}} \rho_0^0(t) - \frac{1}{6\sqrt{6}} \rho_0^2(t) \right) \end{aligned} \quad (3.3)$$

となる。ここで全蛍光強度 I を

$$I \equiv I_\pi + 2I_\sigma \quad (3.4a)$$

で定義すると(3.3) 式より

$$I(t) = \frac{1}{\sqrt{3}} C_D |d_{J_u J_l}|^2 \rho_0^0(t) = \frac{1}{\sqrt{3}} C_D |d_{J_u J_l}|^2 \rho_0^0(0) \exp(-\Gamma t) \quad (3.4b)$$

となる。また、偏光の指標として縦アライメント A_L を

$$A_L \equiv \frac{I_\pi - I_\sigma}{I_\pi + 2I_\sigma} \quad (3.5a)$$

で定義すると(3.3) 式より

$$A_L(t) = \frac{1}{2\sqrt{2}} \frac{\rho_0^2(t)}{\rho_0^0(t)} = \frac{1}{2\sqrt{2}} \frac{\rho_0^2(0)}{\rho_0^0(0)} \exp(-\gamma_2 t) \quad (3.5b)$$

となる。全蛍光強度はポピュレーションと、縦アライメントは規格化アライメントと一対一に対応していることが分かる。

Figure 3.6にFigure 3.4の蛍光強度の時間発展をもとに計算した $\ln I$ 、 $\ln(-A_L)$ の時間発展を示す。Figure 3.6(a)、(b)では $\ln I$ 、 $\ln(-A_L)$ に対して時間に対する指数関数的減衰が見られた。(3.4b)、(3.5b) 式をもとに最小二乗直線フィッティングを行った。 $\ln I$ 、 $\ln(-A_L)$ に対するフィッティング直線の傾きから、それぞれポピュレーション緩和速度、アライメント緩和速度を決めた。

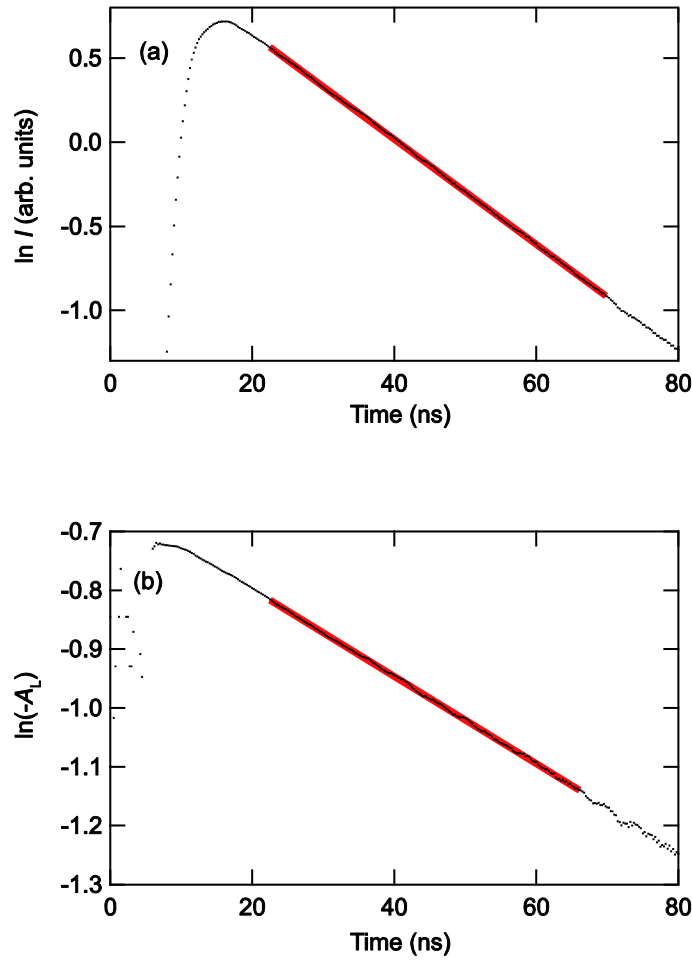


Figure 3.6 Figure 3.4に示した I_π と I_σ の時間発展から計算した $\ln I$ 、 $\ln(-A_L)$ の時間発展。赤色実線は最少二乗フィッティング直線。

3.2.2 ポピュレーション緩和速度

Figure 3.7、3.8にそれぞれ励起ネオン原子（ $2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位）のポピュレーション緩和速度のヘリウム原子数密度依存性を示す。破線はそれぞれの励起状態からの下準位 $1s_k$ ($k = 2, 3, 4, 5$) 準位への遷移に対するEinsteinのA係数の和である。

励起原子の脱励起は自然放射と衝突（原子、イオン、電子衝突）により起こる。一方、2.4節で述べたように、ふく射再吸収によりポピュレーション緩和速度は減少する。脱励起に関わる素過程が互いに影響を及ぼさない場合、

$$\Gamma = \sum_k A_k + \Gamma^{\text{atom}} + \Gamma^{\text{ion}} + \Gamma^e - \Gamma^{\text{re-ab}} \quad (3.6)$$

と書くことができる。 A_k は励起ネオン原子（ $2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位）から下準位 $1s_k$ ($k = 2, 3, 4, 5$) 準位への遷移に対するEinsteinのA係数の和である。

5) 準位へのEinstein のA 係数である。右辺第一項の値はネオン原子 $2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位に対して、それぞれ 3.708×10^7 、 $5.078 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ である[56]。 Γ^{atom} 、 Γ^{ion} 、 Γ^e はそれぞれ原子、イオン、電子との衝突によるポピュレーション緩和速度である。また $\Gamma^{\text{re-ab}}$ はふく射再吸収によって見かけのポピュレーション緩和速度が減少する影響を表す。

Figure 3.7で、励起ネオン原子 ($2p_{10}$ 準位) のポピュレーション緩和速度は、各測定温度に対して、比較的高密度側ではほぼ直線的な傾向が見て取れる。77 K以外の温度で、低密度側では温度に対する負の相関を取っている。また低密度側では、EinsteinのA係数の和に比べて、小さな値を取っている。これは低密度側でふく射再吸収によるポピュレーション緩和速度への影響が大きく出ていることが原因であると考えられる。

一方、Figure 3.8で、ネオン原子 $2p_5$ 準位のポピュレーション緩和速度は、放電気体の温度が高い方が、大きなポピュレーション緩和速度をとっており、77 Kと135 Kの低圧条件を除いてEinsteinのA係数の和に比べて、大きな値を取っている。従って、ふく射再吸収による寄与よりも衝突による寄与が大きいことが分かる。また、すべての温度に対してヘリウム原子数密度に対してほぼ直線的な傾向を取っていることから、ふく射再吸収によるポピュレーション緩和速度の減少はほぼ一定であることが推定できる。

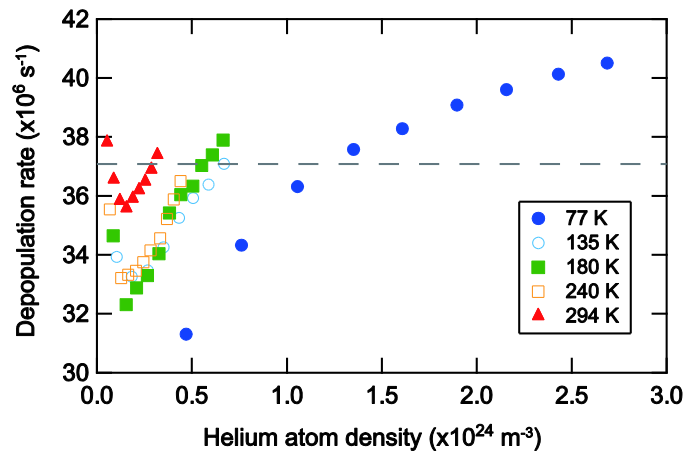


Figure 3.7 $2p_{10}$ 準位のポピュレーション緩和速度のヘリウム原子数密度依存性。破線は $2p_{10}$ 準位と下準位 $1s_k$ ($k=2, 3, 4, 5$) 準位間のEinsteinのA係数の和。

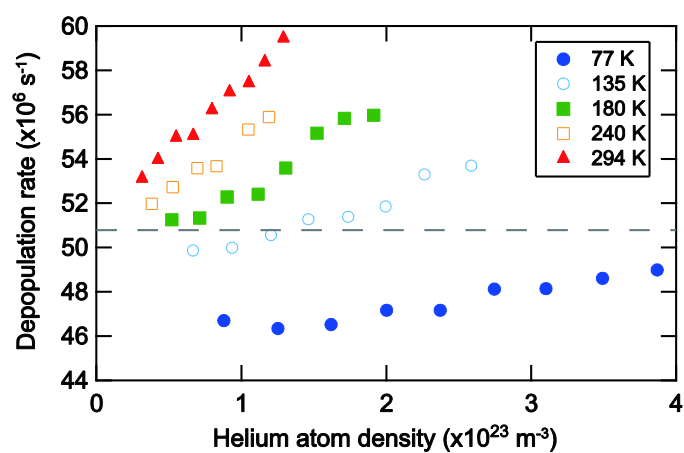


Figure 3.8 $2p_5$ 準位のポピュレーション緩和速度のヘリウム原子数密度依存性。破線は $2p_5$ 準位と下準位 $1s_k$ ($k=2, 3, 4, 5$) 準位間のEinsteinのA係数の和。

3.2.3 アライメント緩和速度

Figure 3.9、3.10に励起ネオン原子 ($2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位) のアライメント緩和速度の衝突原子数密度依存性を示す。

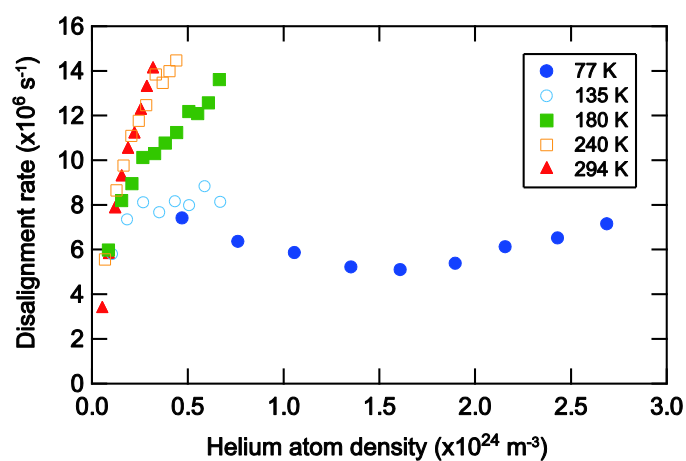


Figure 3.9 $2p_{10}$ 準位のアライメント緩和速度のヘリウム原子数密度依存性。

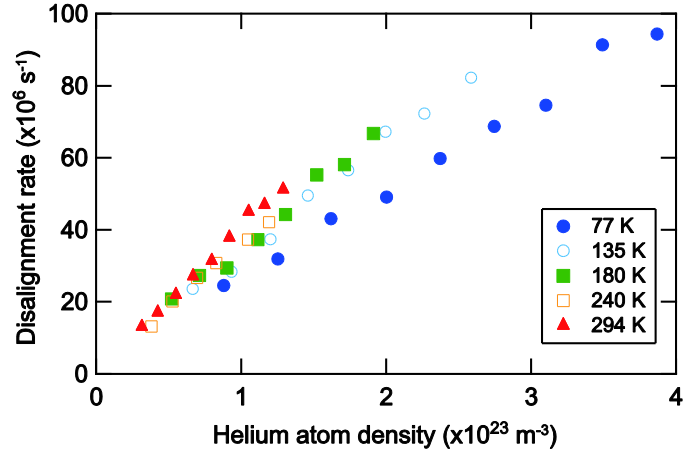


Figure 3.10 2p₅準位のアライメント緩和速度のヘリウム原子数密度依存性。

アライメント緩和は原子衝突過程(原子・イオン・電子衝突)と、ふく射再吸収により起こる。それぞれの過程によるアライメント緩和が互いに影響を及ぼさないと仮定すると γ_2 は次の式で書くことができる。

$$\gamma_2 = \gamma_2^{\text{Ne}} + \gamma_2^{\text{He}} + \gamma_2^{\text{ion}} + \gamma_2^{\text{e}} + \gamma_2^{\text{re-ab}} \quad (3.7)$$

γ_2^{Ne} 、 γ_2^{He} 、 γ_2^{ion} 、 γ_2^{e} はそれぞれネオン原子、ヘリウム原子、イオン、電子衝突によるアライメント緩和速度、また $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ はふく射再吸収によるアライメント緩和速度である。

本実験の実験条件では電子密度が 10^{16} m^{-3} 以下と推定されている[57]。さらに励起ネオン原子(2p₂準位)の電子衝突によるアライメント緩和速度は $(4.1 \pm 1.0) \times 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ と報告されている[58]。従って、励起ネオン原子(2p₂準位)に対して $\gamma_2^{\text{e}} < 10^4 \text{ s}^{-1}$ となる。同電子配置の励起ネオン原子(2p₅、2p₁₀準位)に対しても同程度の γ_2^{e} を仮定すると、 γ_2^{e} は観測された γ_2 の1%以下である。そこで、以降の解析では γ_2^{e} を無視する。また、[58]において、イオン数密度は電子密度と同程度と考えられるが、 γ_2^{ion} は γ_2^{e} より1桁小さい値をとると報告されている。そこで以降の解析では γ_2^{ion} も無視する。ここで改めて、

$$\gamma_2 = \gamma_2^{\text{Ne}} + \gamma_2^{\text{He}} + \gamma_2^{\text{re-ab}} \quad (3.8)$$

と書く。

Figure 3.9で見られる2p₁₀準位のヘリウム原子数密度依存性は温度の減少とともに、著しく線形傾向からずれている。この線形傾向からのずれは、この準位のアライメント緩和速度

が小さいことで、ふく射再吸収による寄与が無視できないことが原因として考えられる。また、77 Kにおける実験で、ある低密度の範囲でヘリウム原子数密度の増加に対してアライメント緩和速度は減少している。従って、少なくともこの領域では、ヘリウム原子数密度の増加に対してふく射再吸収によるアライメント緩和速度は減少していると考えられる。一方、Figure 3.10で見られる $2p_5$ 準位のアライメント緩和速度はヘリウム原子数密度の増加に対してほぼ線形に増加している。

3.3 ふく射再吸収によるポピュレーション緩和とアライメント緩和

3.2節で述べたように、励起ネオン原子 ($2p_{10}$ 準位) に対しては、ポピュレーション緩和速度やアライメント緩和のふく射再吸収の寄与が大きいことが分かった。そこで本節では、ふく射再吸収による寄与を評価する。

3.3.1 自己吸収法による線吸収の測定

ふく射再吸収がポピュレーション緩和とアライメント緩和に与える寄与はMonte Carloシミュレーションにより計算する。シミュレーションの境界条件を決定するため、放電プラズマから発した光が放電プラズマ中でどの程度吸収されているかを調べる必要がある。これはプラズマの線吸収によって評価され、自己吸収法と呼ばれる方法で測定する。自己吸収法の原理はAppendix Aで紹介する。

Figure 3.11に実験装置の概略図を示す。放電プラズマの分光計測装置の反対側に凹面鏡を設置してプラズマから発する光の強度を計測する。また、凹面鏡を設置していない場合にも光の強度を測定する。2つの観測条件で得られた光の強度の比から、放電プラズマの線吸収を調べる。

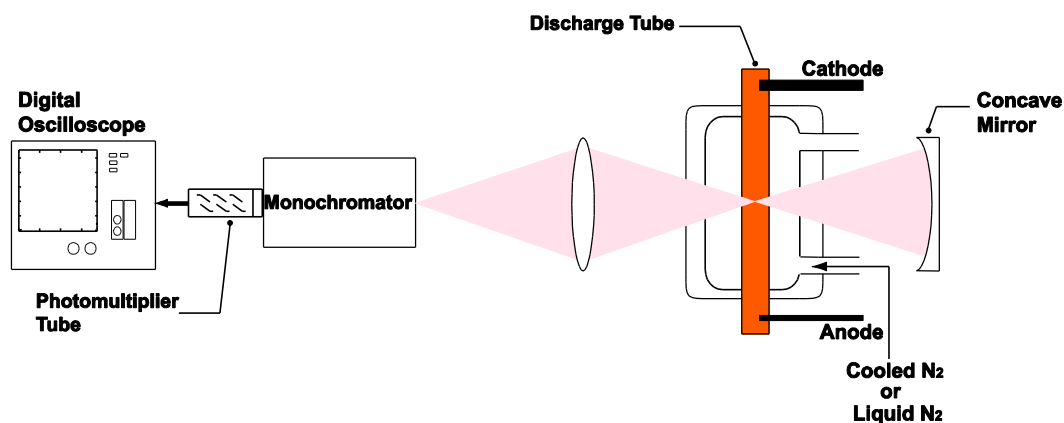


Figure 3.11 自己再吸収法実験の概略図。

用いた放電管、レンズ、分光器、光電子増倍管、デジタルオシロスコープは3.1節のLIF計測で説明したものと同一である。分光器の入口スリット、出口スリットの幅と高さは両スリットともにそれぞれ0.03、5 mmとした。放電管を挟んでレンズと反対側にレンズと同じ焦点距離を持つ凹面鏡を設置した。凹面鏡で反射された像が放電プラズマ自身に重なるように焦点を合わせた。

分光器に付属したサーボモータにより分光器の回折格子を回転させ、出口スリットで観測される波長を掃引した。光電子増倍管からの出力をデジタルオシロスコープで測定し、外部メモリに記録した。得られた出力信号を1回の測定につき足し合わせた値をスペクトル強度と定義する。

実験で得られる凹面鏡が無いときの光強度 I_1 と、凹面鏡があるときの光強度 I_2 は、放電管観測窓の透過率を T_w 、凹面鏡の反射率を R_{CM} 、放電プラズマの線吸収を α 、放電管観測窓からの発光線強度を I_0 として

$$\begin{aligned} I_1 &= T_w I_0 \\ I_2 &= T_w^3 R_{CM} (1 - \alpha) I_0 + T_w I_0 \end{aligned} \quad (3.9)$$

と書ける。

T_w と R_{CM} を決定するために、光学的に十分薄いと考えられる遷移を用いて透過率、反射率を補正した。光学的に薄い遷移に対して、 $\alpha \approx 0$ である。このときの I_0 、 I_1 、 I_2 をそれぞれ I_{0t} 、 I_{1t} 、 I_{2t} とすると

$$\begin{aligned} I_{1t} &= T_w I_{0t} \\ I_{2t} &= T_w^3 R_{CM} I_{0t} + T_w I_{0t} \end{aligned} \quad (3.10)$$

である。(3.9)、(3.10) から、線吸収は

$$\alpha = 1 - \frac{I_2/I_1 - 1}{I_{2t}/I_{1t} - 1} \quad (3.11)$$

と書ける。分光器の感度や凹面鏡の反射率は波長によって異なり、またレンズは色収差を持つ。したがって実験で用いる光学的に薄い遷移は対象としている遷移と波長が近いことが望ましい。

Figure 3.12に励起ネオン原子($2p_{10}$ 準位)と $1s_k(k = 2, 3, 4, 5)$ 準位間の遷移に対するEinsteinのA係数を示す。ネオン原子 $2p_{10}$ 準位と $1s_k(k = 2, 3, 4, 5)$ 準位間の発光の線吸収を決定するために、 $2p_{10} \rightarrow 1s_5$ ($\lambda = 703.2$ nm)、 $2p_{10} \rightarrow 1s_4$ ($\lambda = 724.5$ nm)、 $2p_{10} \rightarrow 1s_3$ ($\lambda = 743.9$ nm)、 $2p_{10} \rightarrow 1s_2$ ($\lambda = 808.2$ nm) 遷移の4本の発光線について I_1 と I_2 の測定を行った。また I_{1t} 、 I_{2t} を測定するため、 $\lambda = 703.2, 724.5, 743.9$ nmに対する光学的に薄い遷移として、ネオン原子の $2p_8 \rightarrow 1s_2$ ($\lambda = 717.4$ nm) 遷移を選び、計測した。このとき用いた放電気体はネオン原子とヘリウム原子の混合気体であり、ネオン、ヘリウム原子数密度がそれぞれ、 1.18×10^{21} 、 $2.48 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ であった。また気体温度は294 Kであり、放電電流は0.3 mAであった。 $\lambda = 808.2$ nmに対してはこの遷移が光学的に薄いと見え、 $\lambda = 717.4$ nmの遷移を観測した場合と同じ放電条件で I_{1t} 、 I_{2t} を測定した。

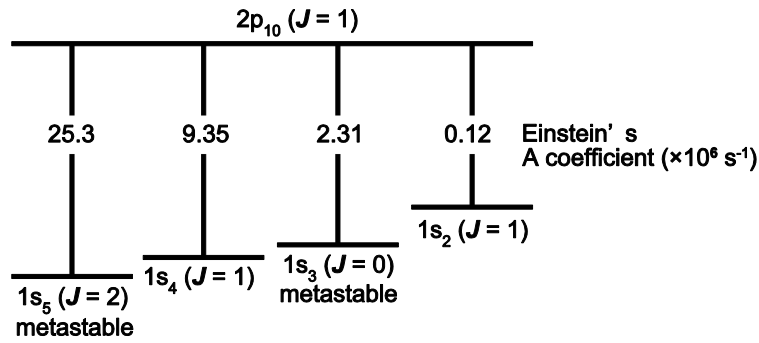


Figure 3.12 $2p_{10}$ 準位と $1s_k$ ($k=2, 3, 4, 5$) 準位間の遷移に対するEinsteinのA係数。

3.3.2 自己吸収法による線吸収計測の結果

Figure 3.13に自己吸収法による線吸収計測の結果の一例を示す。測定温度は77 Kである。 $2p_{10}$ - $1s_5$ 準位間の遷移に対する線吸収が他の遷移に対する線吸収より大きくなっていることが分かる。これは、 $2p_{10} \rightarrow 1s_k$ ($k=2, 3, 4, 5$) 遷移のうち、EinsteinのA係数が $2p_{10} \rightarrow 1s_5$ 遷移に対して最も大きいこと、また、 $1s_k$ ($k=2, 3, 4, 5$) 準位のうち、 $1s_5$ 準位が最も励起エネルギーが低く、準安定状態であることが理由として考えられる。また、ヘリウム原子数密度の増加に伴い、 $2p_{10}$ - $1s_5$ 遷移に対する線吸収が減少しているが、これは準安定状態である $1s_5$ 準位のポピュレーションがヘリウム原子衝突により、減少しているためと考えられる。

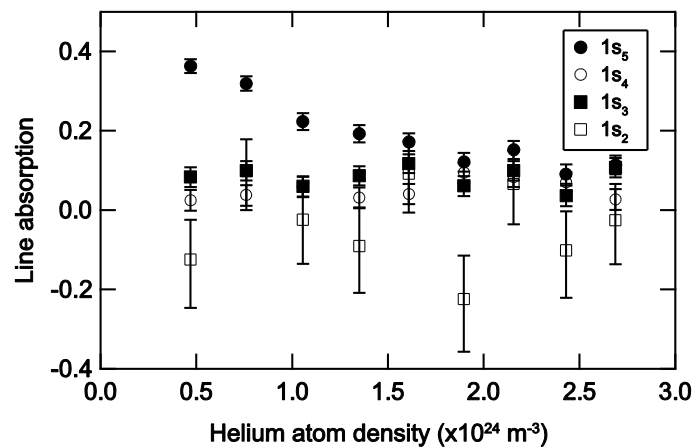


Figure 3.13 $2p_{10} \rightarrow 1s_k$ ($k=2, 3, 4, 5$) 遷移の77 Kに対する線吸収のヘリウム原子数密度依存性。

3.3.3 Monte Carlo シミュレーションによるポピュレーション緩和とアライメント緩和の評価

励起ネオン原子 ($2p_{10}$ 準位) に対して、前節で得られた線吸収をパラメータとするMonte Carloシミュレーション (Appendix A参照) を用いて、ふく射再吸収によって減少したポピュレーション緩和速度 $\sum_k A_k - \Gamma_{\text{re-ab}}$ とふく射再吸収によるアライメント緩和速度 $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ を計算した。その結果をFigure 3.14、3.15に示す。

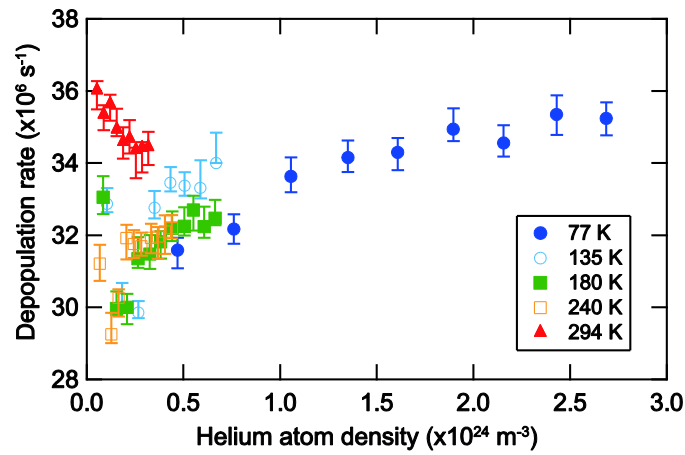


Figure 3.14 $2p_{10}$ 準位に対してMonte Carloシミュレーションにより計算した

$\sum_k A_k - \Gamma_{\text{re-ab}}$ のヘリウム原子数密度依存性。

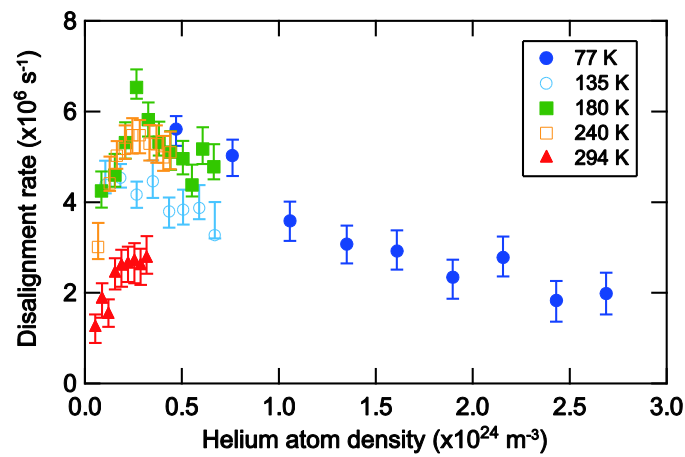


Figure 3.15 $2p_{10}$ 準位に対してMonte Carloシミュレーションにより計算した $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ のヘリウム原子数密度依存性。

Figure 3.14では、 $\sum_k A_k - \Gamma^{\text{re-ab}}$ は294 Kに対して、ヘリウム原子数密度に対して単調減少している一方、77 Kでは、単調増加している。その他の温度では、低原子数密度で減少傾向にあるが、原子数密度の増加により単調増加傾向に転じている。

Figure 3.15で $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ は、294 Kに対して単調増加している一方、77 Kでは単調減少している。その他の温度に対しては、 $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ が単調増加から単調減少へ転じている。

$\sum_k A_k - \Gamma^{\text{re-ab}}$ と $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ のヘリウム原子数密度に対する依存性から、294 Kに対しては、ふく射再吸収による効果はヘリウム原子数密度に対して単調増加していることが分かり、77 Kに対しては、単調減少することが分かる。その他の温度では、低原子数密度で減少傾向にあるが、原子数密度の増加により単調増加傾向に転じていることが分かる。

次にポピュレーション緩和についてシミュレーションにより計算した $\sum_k A_k - \Gamma^{\text{re-ab}}$ を観測した Γ から差し引いた。その結果をFigure 3.16に示す。各温度に対して、高密度側ではほぼ線形に増加しており、衝突による脱励起速度であると解釈できる。一方、低密度側ではシミュレーションによる補正が十分でなく、ヘリウム原子数密度増加に対して値の減少が見られる。ただし、これらの値は寿命に比べて10 %程度であった。

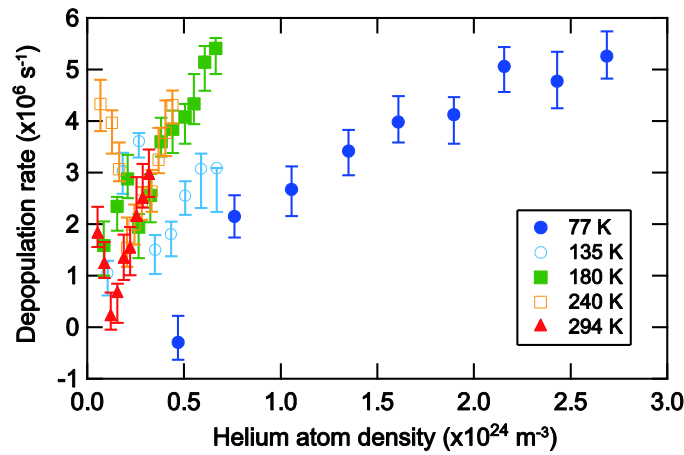


Figure 3.16 $2p_{10}$ 準位のLIF計測により観測された Γ からシミュレーションにより計算した $\sum_k A_k - \Gamma^{\text{re-ab}}$ を差し引いた値のヘリウム原子数密度依存性。

次にアライメント緩和について計算した $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ を、観測した γ_2 から差し引いた。その結果をFigure 3.17に示す。ここではほぼ線形傾向が見られた。このアライメント緩和速度はネオン原子とヘリウム原子衝突によるものと考えられる。ネオン放電中での同様のLIF測定で、励起ネオン原子 ($2p_{10}$, $2p_5$ 準位) の γ_2^{Ne} は $2p_{10}$ 準位の77、135、180、240、294 Kに対してそれぞれ $6.0 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ 、 $1.4 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ 、 $1.6 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ 、 $1.9 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ 、 $1.4 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ 以下であることを確かめている。 $\gamma_2^{\text{Ne}} + \gamma_2^{\text{He}}$ を切片を0と γ_2^{Ne} の上限値でフィッティングした際の傾きの差は2%以下となった。そこで改めて γ_2^{Ne} は無視することとした。図中の直線は切片を0として最小二乗フィッティングした結果である。この直線の傾きを実験から求まるアライメント緩和速度係数と決めた。

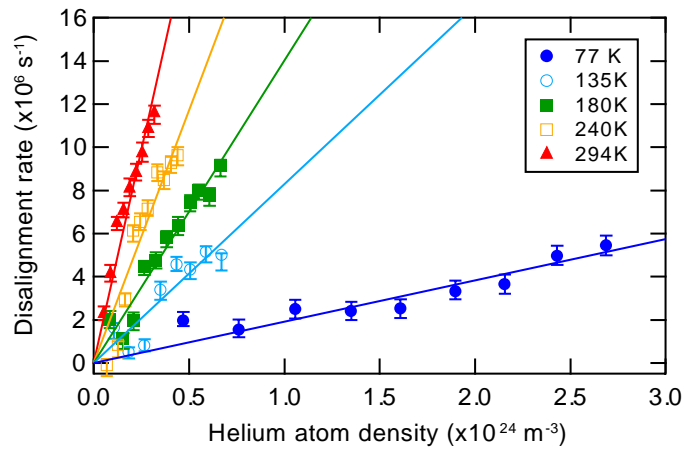


Figure 3.17 $2p_{10}$ 準位のアライメント緩和速度からふく射再吸収によるアライメント緩和速度を差し引いた値のヘリウム原子数密度依存性。実線は切片を0として最小二乗直線フィッティングした結果。

$2p_5$ 準位と $1s_k$ ($k = 2, 3, 4, 5$) 準位間の遷移に対するEinsteinのA係数をFigure 3.18に示す。 $2p_{10}$ 準位と $1s_5$ 準位間のEinsteinのA係数はすべての下準位への遷移に対するEinsteinのA係数の和の68%を占める。一方で、 $2p_5$ 準位と $1s_5$ 準位間のEinsteinのA係数では6.9%であり、 $2p_{10}$ 準位と $1s_5$ 準位間のEinsteinのA係数と比べても1桁小さい。また、アライメント緩和速度が、 $2p_{10}$ 準位に比べて1~2桁大きい。このことから、 $2p_5$ 準位に対して、ふく射再吸収によるアライメント緩和速度は観測した γ_2 に比べて2~3桁小さいことが推測される。

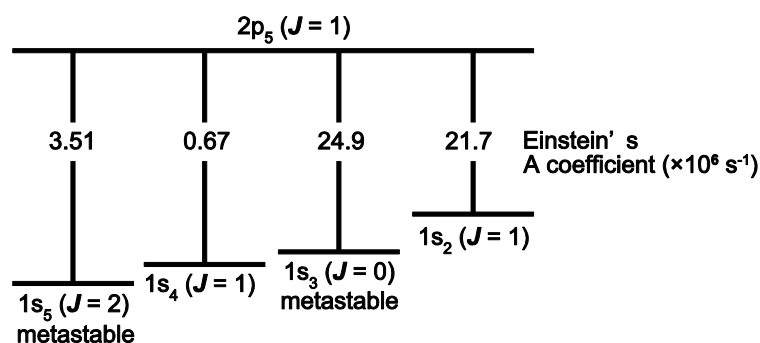


Figure 3.18 $2p_5$ 準位と $1s_k (k=2, 3, 4, 5)$ 準位間の遷移に対する Einstein の A 係数。

3.2.2節、3.2.3節で、LIF計測で観測されたポピュレーション緩和速度とアライメント緩和速度は、ヘリウム原子数密度に対して依存性が小さいと推定した。そこで、 $2p_5$ 準位に対しては、ふく射再吸収による効果は一定と仮定する。

一方、 $2p_5$ 準位に対して γ_2^{Ne} は $1.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 以下であることを確かめた。 $\gamma_2^{\text{Ne}} + \gamma_2^{\text{He}}$ を切片を0として直線フィッティングした場合の傾きと γ_2^{Ne} の上限値でフィッティングした際の傾きの差は2%以下となった。そこで改めて γ_2^{Ne} は無視することとした。Figure 3.8のデータを最小二乗直線フィッティングした。その結果をFigure 3.19に示す。この直線の傾きを実験から求まるアライメント緩和速度係数と決めた。

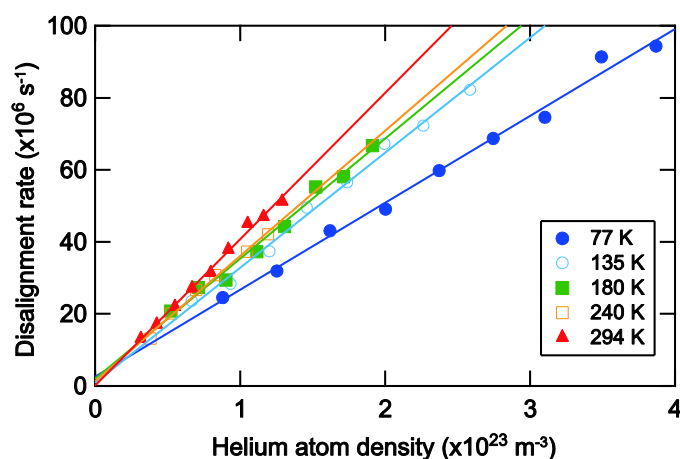


Figure 3.19 $2p_5$ 準位のアライメント緩和速度のヘリウム原子数密度依存性。実線は最小二乗直線フィッティングした結果。

以上のことより決定した励起ネオン原子（ $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位）のアライメント緩和速度係数の温度依存性を Figure 3.20 に示す。得られたアライメント緩和速度係数は温度に対して正の相関を示し、 $2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位に対してそれぞれ温度の 2.2 乗、0.35 乗のべきに従っている。

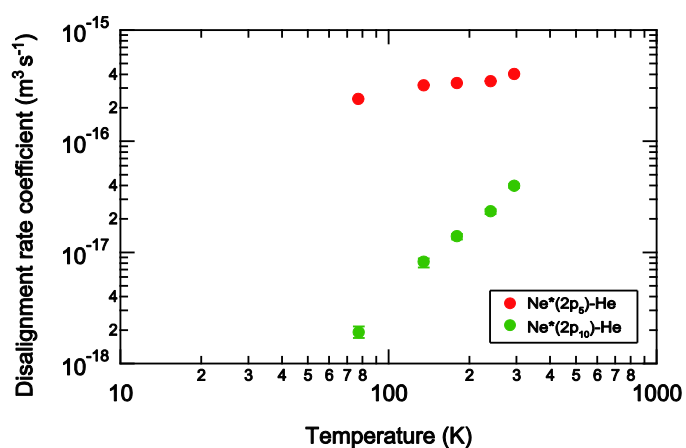


Figure 3.20 励起ネオン原子（ $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位）のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和速度係数の温度依存性。

第4章 励起アルゴン原子のアライメント緩和観測

1章 (1.6) 式のように、Omont、Wang らは、偏極緩和断面積が、入射原子の分極率と入射原子が仮想遷移する際の仮想状態と基底状態とのエネルギー差に依存することを示した[37、38]。

本章では、励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) に対して観測したアライメント緩和に対して述べる。原子間ポテンシャルの非等方性の大きさが異なる入射原子によって、偏極緩和速度係数がどのように依存するかを調べるのが実験の目的である。

なお、本実験でアルゴン原子を標的とするのは、ネオンとアルゴンの混合気体放電では、ネオン原子の下準位がレーザー励起に十分なほど、できなかったためである。

4.1 LIF 計測

実験方法および解析方法は第3章と同じである。

アルゴン原子の $1s_3$ 準安定状態原子 ($J=0$) から測定対象とするアルゴン原子の $2p_2$ 準位 ($J=1$) への励起 ($\lambda = 772.4 \text{ nm}$) に用いるレーザー色素には、メタノールに溶かした LDS751 を用いた。また、観測波長である $2p_2 \rightarrow 1s_2$ 遷移に対応する 826.5 nm に対し、分光器の偏光感度比は 1.77 であった。

4.2 実験結果

4.2.1 ポピュレーション緩和速度

励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のポピュレーション緩和速度のヘリウム、ネオン、アルゴン原子数密度依存性をそれぞれ Figure 4.1 (a)、(b)、(c) に示す。破線は $2p_2$ 準位から $1s_k$ ($k = 2, 3, 4, 5$) 準位への遷移に対する Einstein の A 係数の和であり、その値は $3.522 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ である[56]。アルゴン—ヘリウム混合気体放電の高温・高密度の一部の実験条件を除いて、ポピュレーション緩和速度の値は Einstein の A 係数の和以下の値となっている。また、アルゴン—ヘリウム混合気体、アルゴン—ヘリウム混合気体、アルゴン—ネオン混合気体、アルゴン気体の放電となるにつれ、ポピュレーション緩和速度は原子数密度にのみ依存し、温度に対して依存しなくなっている。

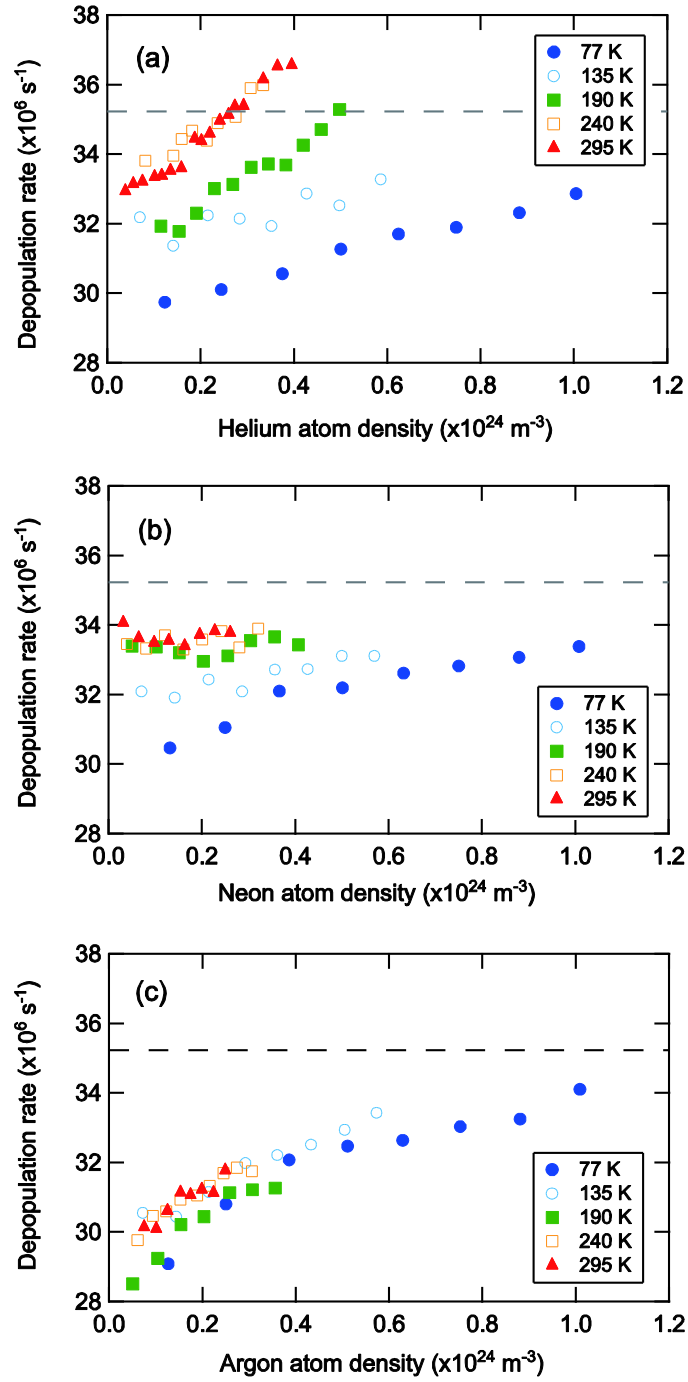


Figure 4.1 励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のポピュレーション緩和速度の(a) ヘリウム、(b) ネオン、(c) アルゴン原子数密度依存性。灰色の破線は $2p_2$ 準位と下準位 $1s_k$ ($k = 2, 3, 4, 5$) 準位間のEinsteinのA係数の和。

4.2.2 アライメント緩和速度

Figure 4.2に励起アルゴン原子（ $2p_2$ 準位）のアライメント緩和速度の衝突原子数密度依存性を示す。ほぼ線形に増加しているが、直線フィッティングすると、およそ $10 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 程度の切片が残る。

第3章での議論と同様に、アライメント緩和は次の式

$$\gamma_2 = \gamma_2^{\text{Ar}} + \gamma_2^{\text{atom}} + \gamma_2^{\text{ion}} + \gamma_2^{\text{e}} + \gamma_2^{\text{re-ab}} \quad (4.1)$$

と書くことができる。 γ_2^{Ar} 、 γ_2^{atom} はそれぞれアルゴン原子、入射原子衝突によるアライメント緩和速度である。ここでは第3章と同様に γ_2^{e} 、 γ_2^{ion} を無視する。

ここであらためて

$$\gamma_2 = \gamma_2^{\text{Ar}} + \gamma_2^{\text{atom}} + \gamma_2^{\text{re-ab}} \quad (4.2)$$

と書く。ただし、アルゴン気体放電での実験では、

$$\gamma_2 = \gamma_2^{\text{Ar}} + \gamma_2^{\text{re-ab}} \quad (4.3)$$

である。

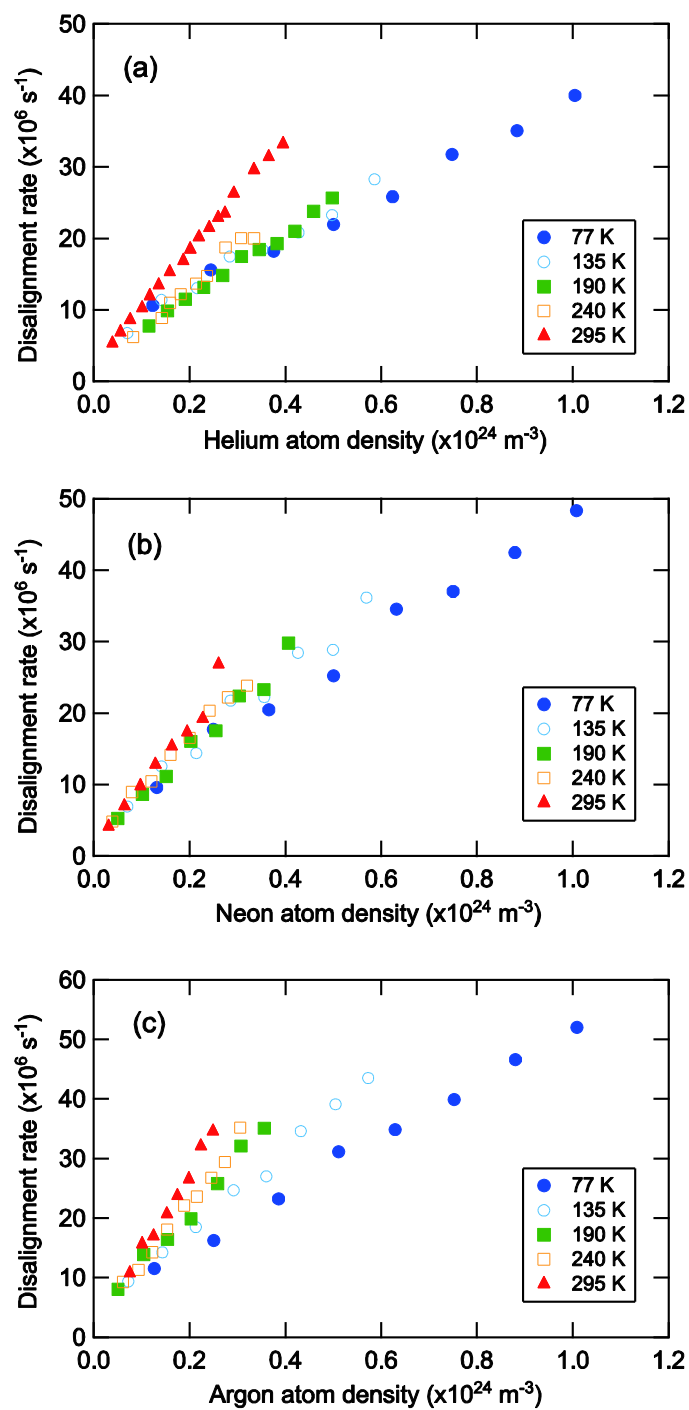


Figure 4.2 励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のアライメント緩和速度の(a)ヘリウム、(b)ネオン、(c)アルゴン原子数密度依存性。

4.3 ふく射再吸収によるポピュレーション緩和とアライメント緩和

4.2 節でポピュレーション緩和速度がほとんどの実験点で、Einstein の A 係数の和を下回ることを述べた。また、アライメント緩和速度の衝突原子数密度依存性に対して直線フィッティングをするとアライメント緩和速度に対して比較的大きな切片が残ることを述べた。そこで、自己吸収法と Monte Carlo シミュレーションを用いて、ふく射再吸収の寄与を評価する。

4.3.1 自己吸収法による線吸収計測

アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) と $1s_k (k = 2, 3, 4, 5)$ 準位間の発光の線吸収を決定するために、 $2p_4 \rightarrow 1s_5$ ($\lambda = 714.7$ nm)、 $2p_7 \rightarrow 1s_4$ ($\lambda = 810.4$ nm)、 $2p_4 \rightarrow 1s_3$ ($\lambda = 794.8$ nm)、 $2p_1 \rightarrow 1s_2$ ($\lambda = 750.4$ nm) 遷移に対する4本の発光線について I_1 と I_2 の測定を行った。ここで、 $2p_2 \rightarrow 1s_k (k = 2, 3, 4, 5)$ 遷移を用いなかったのは、 $2p_2 \rightarrow 1s_k (k = 3, 4, 5)$ 遷移には用いた分光器で区別できないほど近接したアルゴンの別の発光線があるためであり、 $2p_2 \rightarrow 1s_2$ 遷移に対する発光では、ヘリウム原子の発光線が近接しているためである。なお、上準位が異なる発光線間の光学厚さの関係をAppendix A.2に示した。

また I_{1t} 、 I_{2t} の測定には、 $\lambda = 810.4, 794.8$ nm に対する光学的に薄い遷移として、アルゴン原子の $2p_2 \rightarrow 1s_2$ ($\lambda = 826.5$ nm) 遷移を計測した。このとき用いた放電気体はアルゴン原子気体であり、アルゴン原子数密度は $7.37 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$ であった。また気体温度は 295 K であり、放電電流は 0.15 mA であった。 $\lambda = 714.7, 750.4$ nm に対しては、アルゴン原子 $3s_5 \rightarrow 2p_9$ ($\lambda = 703.0$ nm) 遷移を用いて I_{1t} 、 I_{2t} を測定した。放電条件は $2p_2 \rightarrow 1s_2$ 遷移を計測した際の条件と同じであった。 $2p_4 \rightarrow 1s_5$ 、 $2p_7 \rightarrow 1s_4$ 、 $2p_4 \rightarrow 1s_3$ 、 $2p_1 \rightarrow 1s_2$ 遷移の光学厚さを求めた後、(A.11) を用いて、 $2p_2 \rightarrow 1s_k (k = 2, 3, 4, 5)$ 準位間の光学厚さを決定した。得られた光学厚さをもとに Monte Carlo シミュレーションによってふく射再吸収によるポピュレーション緩和速度とアライメント緩和速度を計算した。

4.3.2 Monte Carlo シミュレーションによるポピュレーション緩和とアライメント緩和の評価

まずポピュレーション緩和について述べる。シミュレーションにより $\sum_k A_k - \Gamma^{\text{re-ab}}$ を計算した。衝突によるポピュレーション緩和速度をFigure 4.3に示す。Figure 4.1の値に対してほとんどの点で10%以下の値を取っている。また、Figure 4.1の値と比べてデータ点がばらつきが大きく、ヘリウム原子数密度に対する明確な依存性は見られなかった。

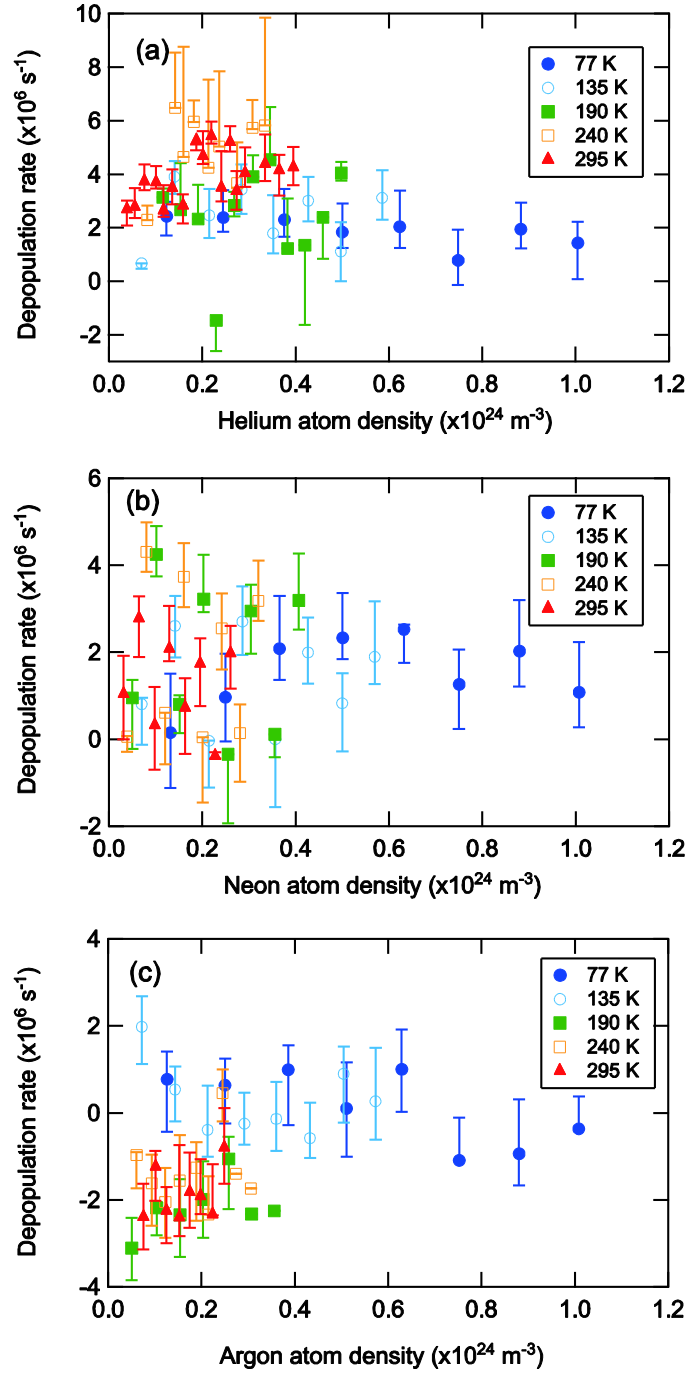


Figure 4.3 励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のLIF計測により観測された Γ からシミュレーションにより計算した $\sum_k A_k - \Gamma^{\text{re-ab}}$ を差し引いた値の(a) ヘリウム、(b) ネオン、(c) アルゴン原子数密度依存性。

次にアライメント緩和について述べる。まず、アルゴン気体放電について述べる。(4.3)より γ_2 から、シミュレーションにより計算した $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ を差し引いた結果のアルゴン原子数密度依存性をFigure 4.4(c)に示す。ここではほぼ線形傾向が見られた。これは γ_2^{Ar} と考えられ、図中の直線は切片を0として最小二乗フィッティングした結果である。この直線の傾きをアルゴン原子衝突によるアライメント緩和速度係数と決めた。

次に、アルゴン—ヘリウム気体放電、アルゴン—ネオン気体放電に対して、決定したアライメント緩和速度係数にアルゴン原子数密度をかけることで γ_2^{Ar} を評価し、差し引いた。また、シミュレーションにより推定した $\gamma_2^{\text{re-ab}}$ を差し引いた。それらの結果がそれぞれFigure 4.4(a)、(b)である。図中の直線は切片を0として最小二乗フィッティングした結果である。これらの直線の傾きをそれぞれヘリウム、ネオン原子衝突によるアライメント緩和速度係数と決めた。

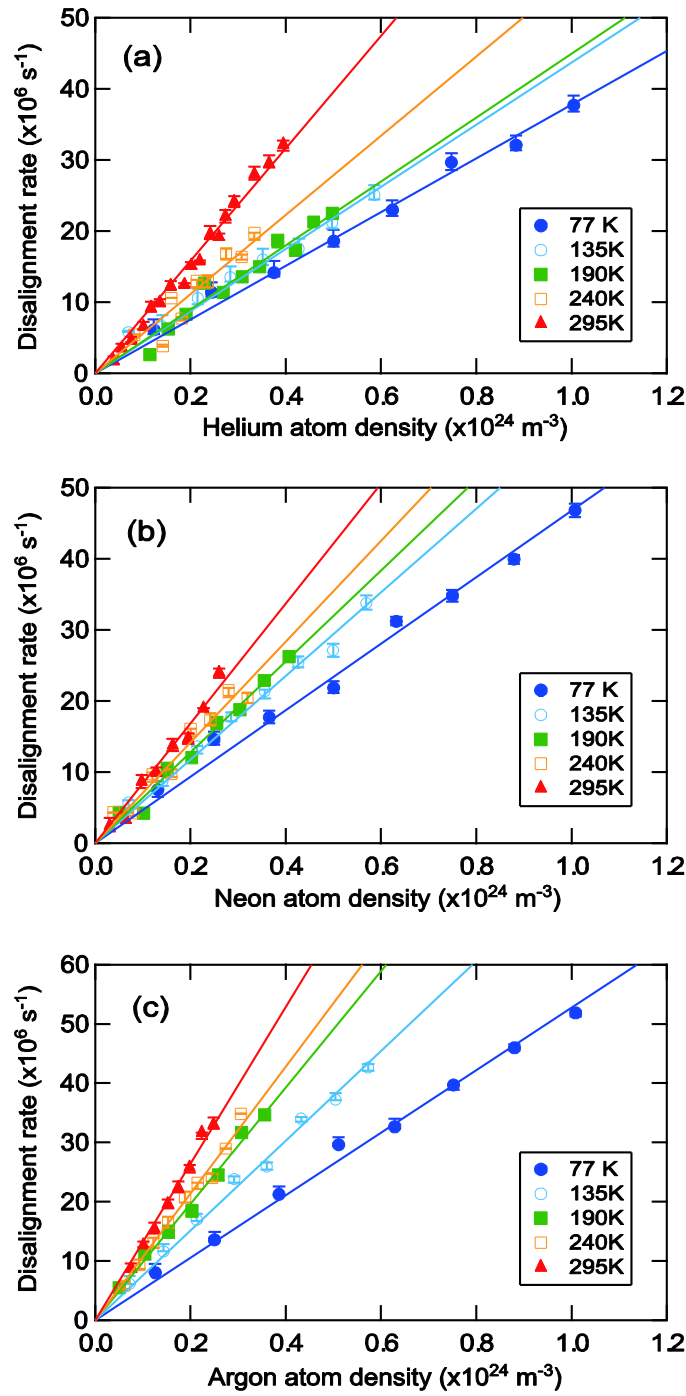


Figure 4.4 励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のアライメント緩和速度。(a)アルゴン原子衝突によるアライメント緩和速度とふく射再吸収によるアライメント緩和速度を差し引いた値のヘリウム原子数密度依存性、(b) アルゴン原子衝突によるアライメント緩和速度とふく射再吸収によるアライメント緩和速度を差し引いた値のネオン原子数密度依存性、(c) ふく射再吸収によるアライメント緩和速度を差し引いた値のアルゴン原子数密度依存性。実線は切片を0として最小二乗直線フィッティングした結果。

Figure 4.5に励起アルゴン原子（ $2p_2$ 準位）のヘリウム、ネオン、アルゴン原子衝突によるアライメント緩和速度係数の温度依存性を示す。すべての入射原子に対して、温度に対する正の相関が見られる。また、入射原子の原子番号が大きくなるにつれて速度係数が大きくなっている。励起ネオン原子の場合で見られたような温度に対する明確なべき依存性は見られなかった。

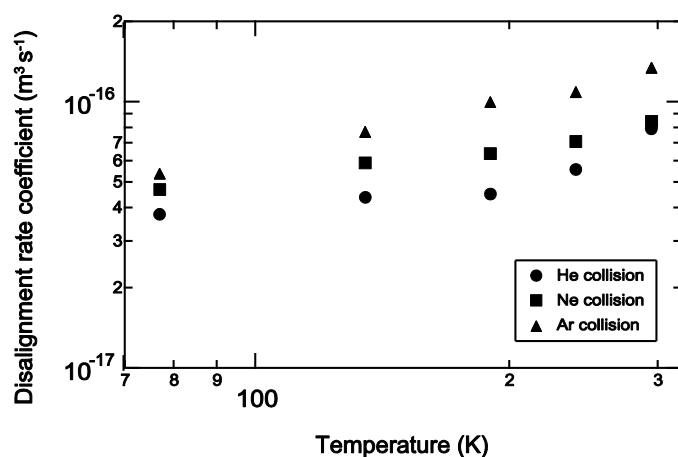


Figure 4.5 励起アルゴン原子（ $2p_2$ 準位）のヘリウム、ネオン、アルゴン原子衝突によるアライメント緩和速度係数の温度依存性。

5 章 励起ネオン原子のオリエンテーション緩和観測

1 章で述べたように、2004 年に、Nimura らは励起ネオン原子 ($2p_2$ 準位) のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和速度係数を報告した[36]。得られたオリエンテーション緩和速度係数は温度に対して正の相関を見せ、ほぼ温度のべき関数に従った。

筆者が励起ネオン原子 ($2p_5$, $2p_{10}$ 準位) のアライメント緩和測定をしていた 2010 年に Bahrim らは、励起ネオン原子 ($2p_2$, $2p_5$, $2p_7$, $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和断面積およびオリエンテーション緩和速度係数の計算を発表した[44]。Nimura らによる励起ネオン原子 ($2p_2$ 準位) の実験値と理論値を比較すると、35 K 以上の温度領域では 6 ~ 30 % の誤差で比較的良く一致する。それ以下の温度領域で理論値は実験値と乖離し始め、温度に対する負の相関を見せる。

本章では、オリエンテーション緩和の準位に対する依存性を確認するため、励起ネオン原子 ($2p_5$, $2p_{10}$ 準位) に対し、円偏光したパルスレーザー光を用いてポピュレーションが $M = -1$ に配向した原子を励起し、その状態からの円偏光分離した蛍光の時間発展を観測する。

5.1 オリエンテーション緩和 LIF 計測実験を行う際のアライメント緩和 LIF 計測実験からの変更点

実験装置の配置の概略図を Figure 5.1 に示す。円偏光励起を行う際には、実験配置(a)で行い、レーザー光の進行方向に量子化軸をとる。直線偏光励起を行う際には、実験配置(b)で行い、レーザー光の偏光方向に量子化軸をとる。実験配置(a)、(b) でデカルト座標系 (x , y , z) をそれぞれの図のように定義する。

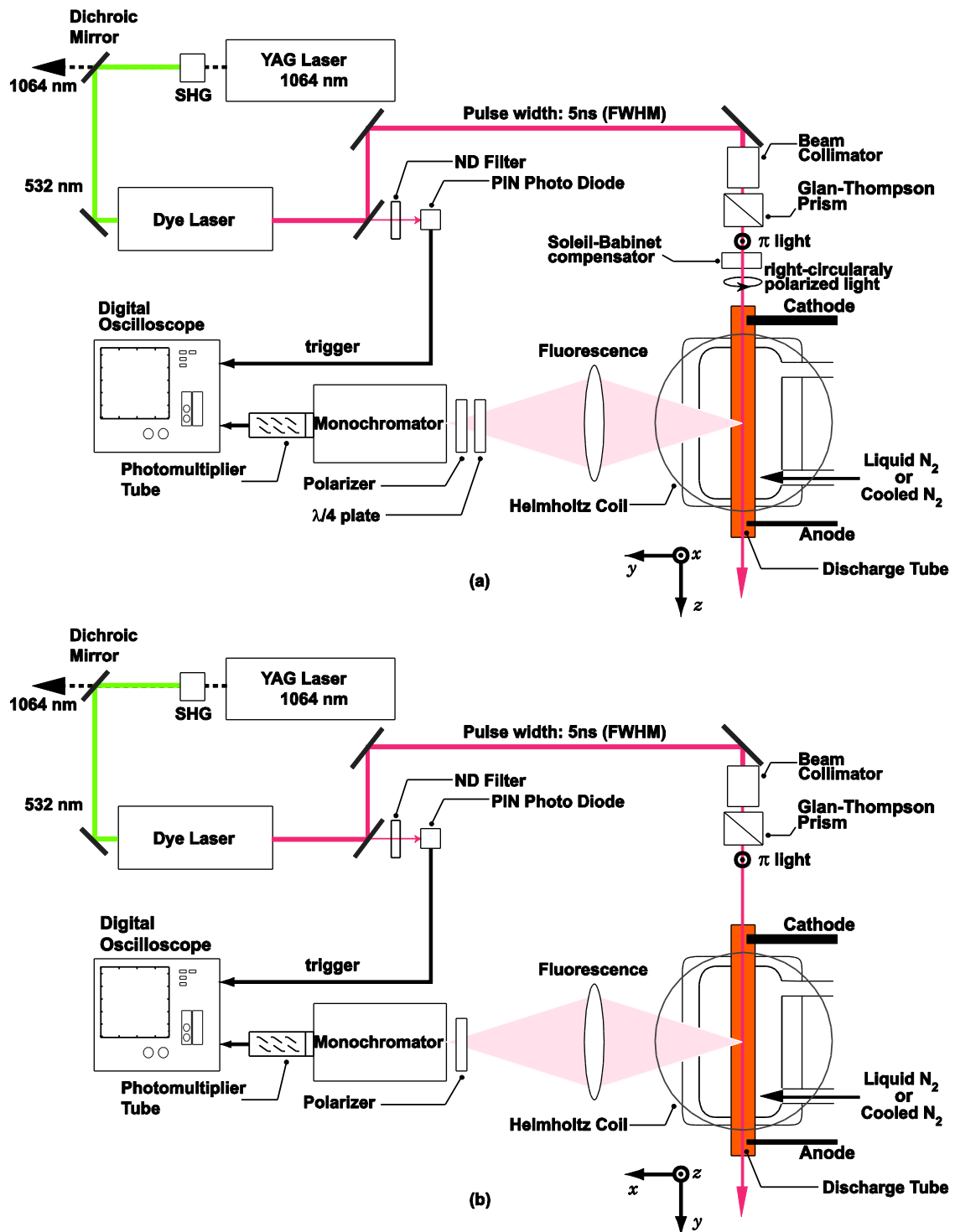


Figure 5.1 実験装置の概略図。(a) 円偏光励起を行う際の配置、(b) 直線偏光励起を行う際の配置。

励起光源

実験配置(a)では、パルスレーザー光をグラントムソンプリズムに通して、 x 軸方向に偏光させ、Soleil-Babinet 位相補償板により、レーザー光を照射される放電管内の原子から見て右回りの円偏光にした。アパーチャを通してレーザー光のビーム直径を約 1 mm とし、放電管に入射した。

測定系

実験配置(a)では、分光器の前にある直線偏光板の前に 1/4 波長板を置いた。直線偏光板は y 方向に直線偏光した光が透過するようにして、1/4 波長板の進相軸と遅相軸を回転させることで、左回り円偏光成分と右回り円偏光成分を分離した。

磁場

直径 1 mm の銅線を直径 80 mm で巻いたヘルムホルツコイルを設置し、放電層の観測部中央付近に実験配置(a)の x 軸、実験配置(b)の z 軸の正方向に定常磁場をかけた。磁場強度は $2p_5$ 準位のオリエンテーション緩和測定に対して 3.3 mT、 $2p_{10}$ 準位のオリエンテーション緩和測定に対して 2.0 mT とした。また、ガウスメータによりヘルムホルツコイルの中心付近の磁場を測定した。 $10 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$ の立方体範囲中で有効数字 2 桁の範囲で磁場の大きさに有意な変化は見られなかった。

5.2 実験結果と解析

5.2.1 LIF 計測の解析

Figure 5.2に $2p_5 \rightarrow 1s_2$ 遷移に対応する左回り、右回り円偏光成分、 π 、 σ 直線偏光成分のLIF強度の時間発展の一例を示す。レーザー散乱光とバックグラウンド信号は差し引いている。左回り、右回り円偏光成分の蛍光強度を I_L 、 I_R 、 σ 、 π 直線偏光成分の蛍光強度を I_σ 、 I_π とする。Figure 5.2で I_L 、 I_σ の最大強度が1となるように規格化した。このときの放電条件は気体温度77 K、ネオンとヘリウムの原子数密度がそれぞれ 6.30×10^{21} 、 $1.10 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ 、放電電流は0.70 mAであった。

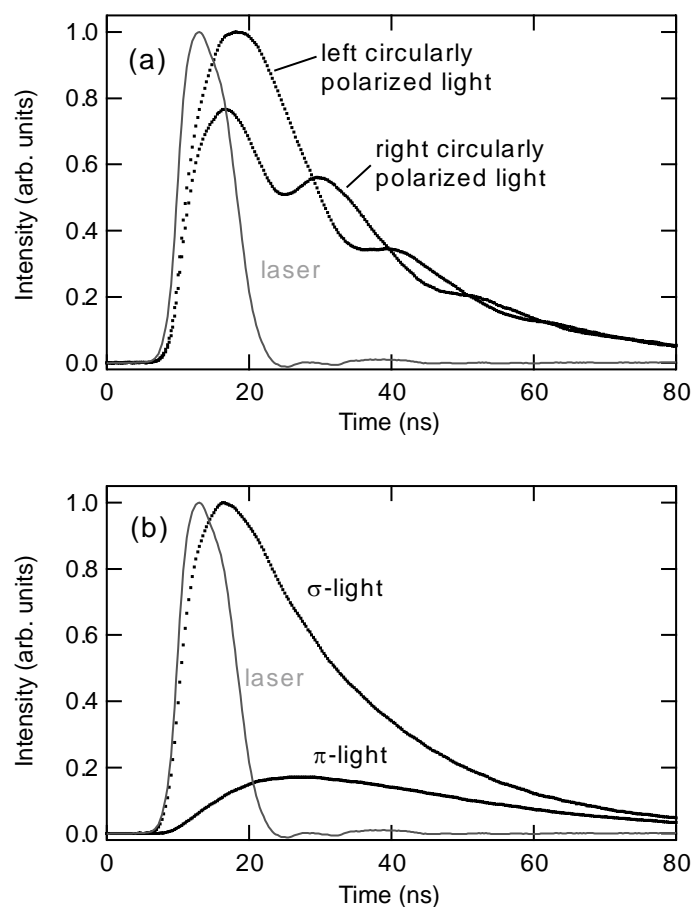


Figure 5.2 $2p_5 \rightarrow 1s_2$ 遷移($\lambda = 671.7 \text{ nm}$)の LIF 強度の各偏光成分の時間発展の一例。
(a) 右回り円偏光励起時の左回り、右回り円偏光成分 (b) 直線偏光励起時の π 、 σ 偏光成分。放電気体の温度は 77 K であり、ネオン原子数密度とヘリウム原子数密度はそれぞれ 6.30×10^{21} 、 $1.10 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$ であった。

Figure 5.3 に実験配置(a)における励起時と観測時の Kastler ダイアグラムを示す。パルスレーザー光による励起は $J=0$ をもつ下準位から $J=1$ をもつ上準位への σ^- 励起である。そのため励起直後の $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位は $M = -1$ にのみポピュレーションを持つ。

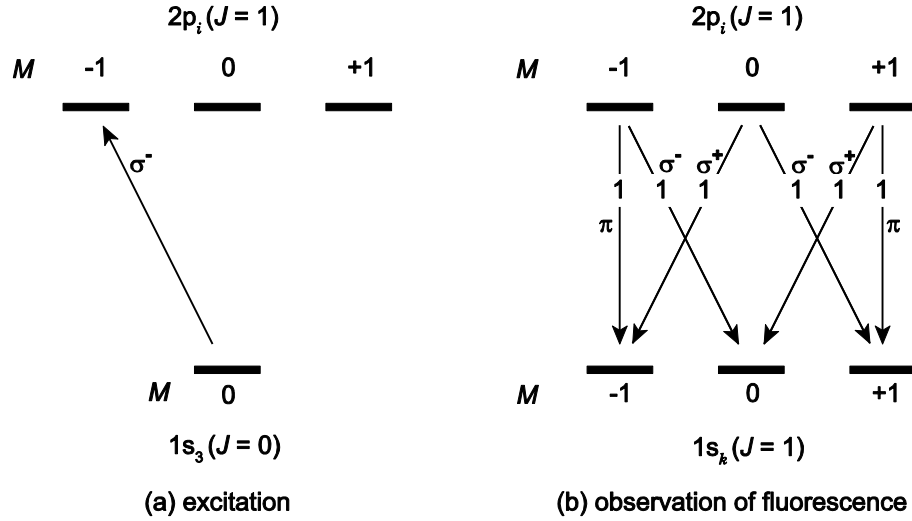


Figure 5.3 (a)励起時と(b)観測時の Kastler ダイアグラム。

本実験では磁場による影響を考えなければならない。ここでは状態多極子の時間発展を考える。磁場を量子化軸と異なる方向に印加している場合、 $M = 1, 0, -1$ の状態間にコヒーレンスが生じるため、状態多極子の時間発展は

$$\begin{aligned}
 \rho_0^0(t) &= \rho_0^0(0) \exp(-\Gamma t) \\
 \rho_0^1(t) &= \rho_0^1(0) \exp\{-(\Gamma + \gamma_1)t\} \\
 \rho_{\pm 1}^1(t) &= \mp \rho_{\pm 1}^1(0) \exp\{-(\Gamma + \gamma_1)t\} \exp(i\omega t) \\
 \rho_0^2(t) &= \rho_0^2(0) \exp\{-(\Gamma + \gamma_2)t\} \\
 \rho_{\pm 1}^2(t) &= \mp \rho_{\pm 1}^2(0) \exp\{-(\Gamma + \gamma_2)t\} \exp(i\omega t) \\
 \rho_{\pm 2}^2(t) &= \rho_{\pm 2}^2(0) \exp\{-(\Gamma + \gamma_2)t\} \exp(2i\omega t)
 \end{aligned} \tag{5.1}$$

と書けることが分かっている[49]。ここで ω は Larmor 周波数であり、

$$\omega = \frac{\mu_B g B}{\hbar} \tag{5.2}$$

で与えられる。 μ_B 、 g 、 B はそれぞれ Bohr 磁子、Landé の g 因子、磁場強度である。ネオン原子 $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位に対して、 g はそれぞれ 0.994、1.997 である[59]。

次に実験配置(a)による実験での左回り、右回りの各円偏光成分の蛍光強度を考える。左

回り円偏光は、 $M = -1$ の原子を励起する。従って、初期状態に対応する密度行列を ρ' と書くことにすると

$$\rho' = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (5.3)$$

となる。

ここでは、磁場による原子の偏極の回転を考えなければならないが、摂動の取り扱い、実験配置(a)の座標系から実験配置(b)の座標系に変換すると容易になる。(5.3)に示した実験配置(a)の座標系での密度行列は実験配置(b)の座標系において

$$D_{q'q}^x \left(0, \frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2} \right) \rho' \left(D_{q'q}^x \left(0, \frac{\pi}{2}, \frac{\pi}{2} \right) \right)^{-1} = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} 1 & \sqrt{2}i & -1 \\ -\sqrt{2}i & 2 & \sqrt{2}i \\ -1 & -\sqrt{2}i & 1 \end{pmatrix} \equiv \rho \quad (5.4)$$

となる。ここで $D_{q'q}^x(\alpha, \beta, \gamma)$ は回転演算子の行列要素である。

実験配置(b)の座標系での左回り、右回り円偏光成分の偏光ベクトルはそれぞれ、 $\frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{e}_y + i\mathbf{e}_z)$ 、 $\frac{1}{\sqrt{2}}(\mathbf{e}_y - i\mathbf{e}_z)$ である。それぞれの偏光に対する光子の状態多極子のうち、0でないものは、左回り円偏光に対して、

$$\begin{aligned} \phi_0^0(\mathbf{e}) &= \frac{1}{\sqrt{3}} & \phi_0^2(\mathbf{e}) &= -\frac{1}{2\sqrt{6}} \\ \phi_{\pm 1}^1(\mathbf{e}) &= \mp \frac{1}{2} & \phi_{\pm 2}^2(\mathbf{e}) &= \frac{1}{4} \end{aligned} \quad (5.5)$$

となり、右回り円偏光に対して、

$$\begin{aligned} \phi_0^0(\mathbf{e}) &= \frac{1}{\sqrt{3}} & \phi_0^2(\mathbf{e}) &= -\frac{1}{2\sqrt{6}} \\ \phi_{\pm 1}^1(\mathbf{e}) &= \pm \frac{1}{2} & \phi_{\pm 2}^2(\mathbf{e}) &= \frac{1}{4} \end{aligned} \quad (5.6)$$

となる。左回り、右回り各円偏光成分の蛍光強度を I_L , I_R とすると、(2.14)、(2.16)、(5.5)、(5.6) 式から、

$$\begin{aligned} I_L(t) &= C_D |d_{J_u J_l}|^2 \left(\frac{1}{3\sqrt{3}} \rho_0^0(t) + \frac{1}{12} \rho_1^1(t) - \frac{1}{12} \rho_{-1}^1(t) + \frac{1}{12\sqrt{6}} \rho_0^2(t) - \frac{1}{24} \rho_2^2(t) - \frac{1}{24} \rho_{-2}^2(t) \right) \\ &= C_D |d_{J_u J_l}|^2 \left(\frac{1}{3\sqrt{3}} \rho_0^0(t) + \frac{1}{6} \rho_1^1(t) + \frac{1}{12\sqrt{6}} \rho_0^2(t) - \frac{1}{12} \rho_2^2(t) \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
I_R(t) &= C_D \left| d_{J_u J_1} \right|^2 \left(\frac{1}{3\sqrt{3}} \rho_0^0(t) - \frac{1}{12} \rho_1^1(t) + \frac{1}{12} \rho_{-1}^1(t) + \frac{1}{12\sqrt{6}} \rho_0^2(t) - \frac{1}{24} \rho_2^2(t) - \frac{1}{24} \rho_{-2}^2(t) \right) \\
&= C_D \left| d_{J_u J_1} \right|^2 \left(\frac{1}{3\sqrt{3}} \rho_0^0(t) - \frac{1}{6} \rho_1^1(t) + \frac{1}{12\sqrt{6}} \rho_0^2(t) - \frac{1}{12} \rho_2^2(t) \right)
\end{aligned} \tag{5.7}$$

となる。ここで偏光の指標として、

$$O \equiv \frac{I_L - I_R}{I_\pi + 2I_\sigma} \tag{5.8}$$

を導入すると(3.3)、(5.1)、(5.7) 式から、

$$\begin{aligned}
O(t) &= \frac{1}{\sqrt{3}} \frac{\rho_1^1(t)}{\rho_0^0(t)} = \frac{i}{\sqrt{6}} \frac{\rho_0^1(t)}{\rho_0^0(t)} \\
&= -\frac{i}{2} \exp(-\gamma_1 t) \exp(i\omega t)
\end{aligned} \tag{5.9}$$

となる、(5.9) 式の実部を取ると、

$$O(t) = \frac{1}{2} \exp(-\gamma_1 t) \sin \omega t \tag{5.10}$$

となる。

Figure 5.4 に Figure 5.2 の蛍光強度の時間発展をもとに計算した $\ln(I)$ 、 $\ln(-A_L)$ 、 O の時間発展を示す。 $\ln I$ 、 $\ln(-A_L)$ に対しては、第 3 章で見られたように、時間に対する指数関数的減衰が見られ、最小二乗直線フィッティングを行った。 $\ln I$ 、 $\ln(-A_L)$ に対するフィッティング直線の傾きから、それぞれポピュレーション緩和速度、アライメント緩和速度を決めた。また、 O に対しては式(5.10) 式に基づいて最小二乗フィッティングを行った。フィッティング曲線の指数関数部分の減衰の時定数を、実験で決まるオリエンテーション緩和速度 γ_1 と決めた。

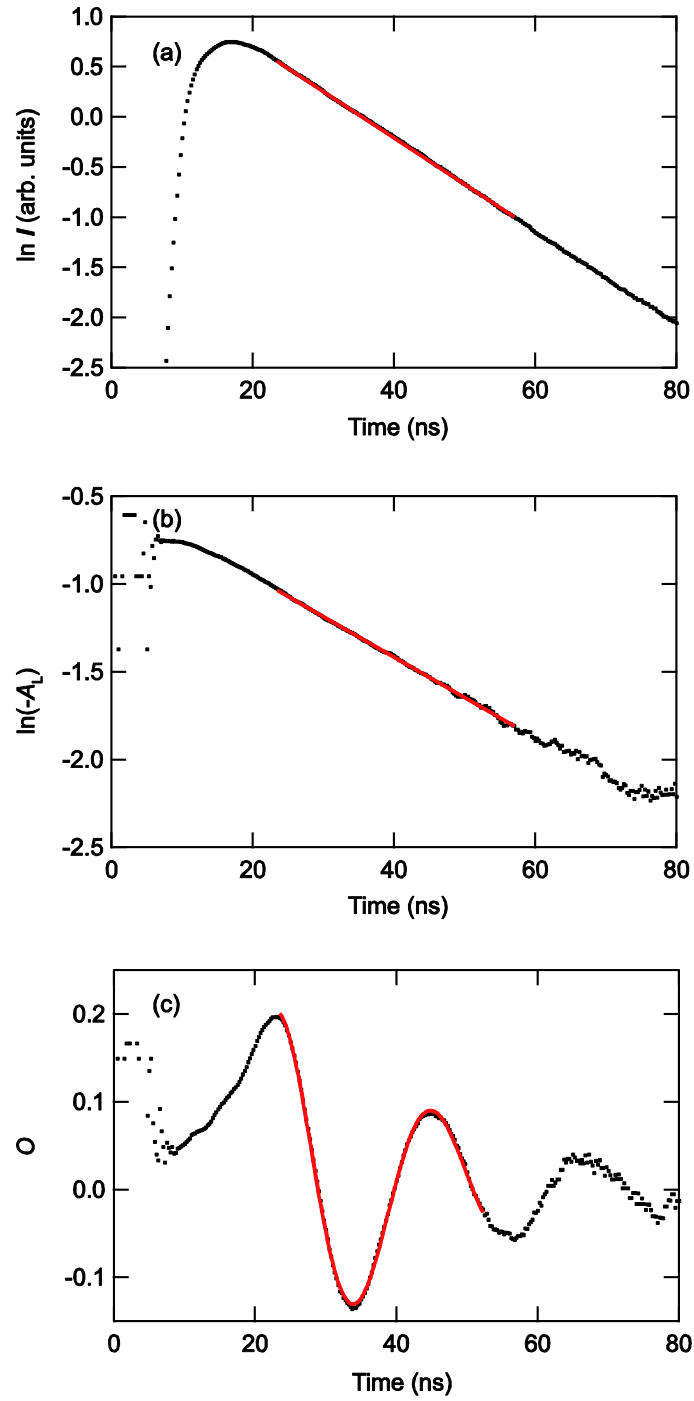


Figure 5.4 Figure 5.2 に示した蛍光の時間発展から計算した励起ネオン原子 $2p_5$ 準位の (a) $\ln I$ 、(b) $\ln(-A_L)$ 、(c) O の時間発展。赤色実線は(a)、(b) 最小二乗直線フィッティング、(c) (5.10) 式に基づいた最小二乗フィッティングの結果である。

5.2.2 ポピュレーション緩和、アライメント緩和とオリエンテーション緩和

Figure 5.5、5.6 にそれぞれ励起ネオン原子 ($2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位) のポピュレーション緩和速度 γ_0 、アライメント緩和速度 γ_2 、オリエンテーション緩和速度 γ_1 のヘリウム原子数密度依存性を示す。

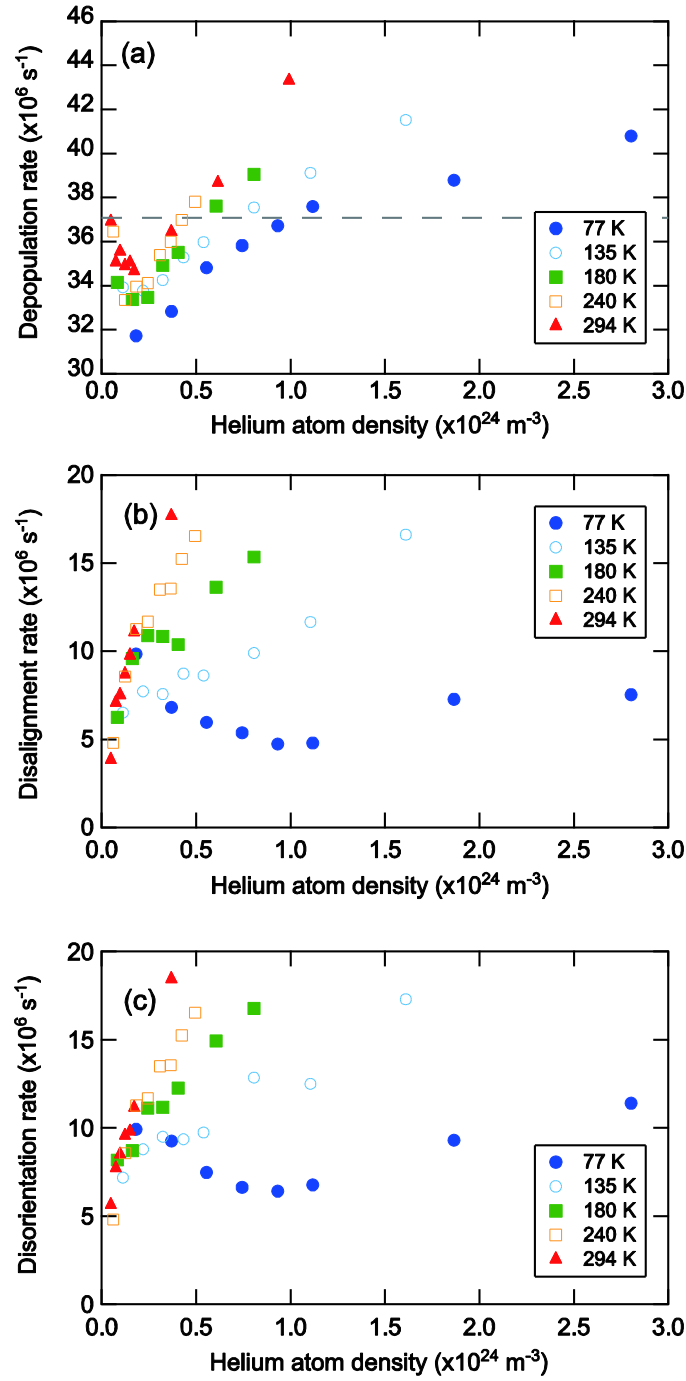


Figure 5.5 $2p_{10}$ 準位の(a)ポピュレーション緩和速度 γ_0 、(b)アライメント緩和速度 γ_2 、(c)オリエンテーション緩和速度 γ_1 のヘリウム原子数密度依存性。

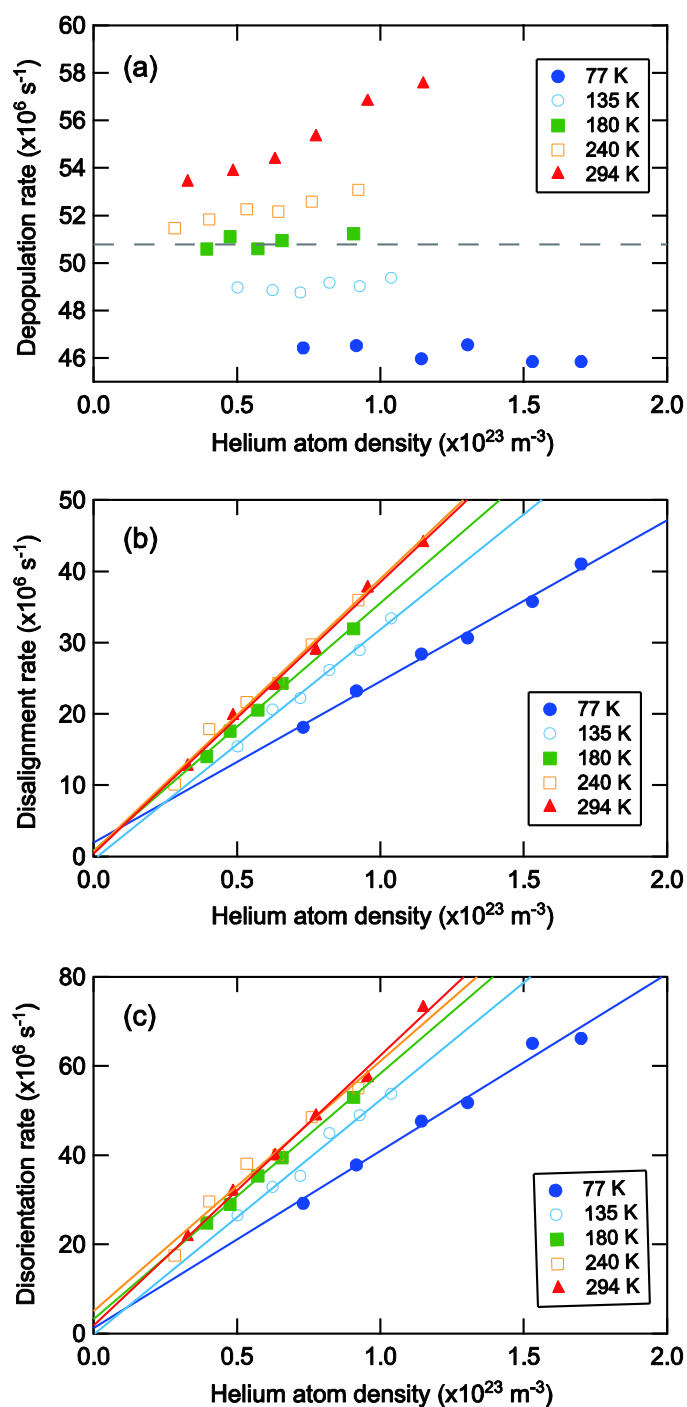


Figure 5.6 $2p_5$ 準位の (a) ポピュレーション緩和速度 γ_0 、(b) アライメント緩和速度 γ_2 、(c) オリエンテーション緩和速度 γ_1 のヘリウム原子数密度依存性。(b)、(c)の直線は最小二乗直線フィッティングの結果である。

第3章と同様に Figure 5.5 (b)のアライメント緩和速度からふく射再吸収の寄与を差し引き、切片を0として最小二乗直線フィッティングした。また $2p_5$ 準位に対しては Figure 5.6 (b)中の直線が最小二乗直線フィッティングした結果である。これらの傾きをアライメント緩和速度係数と決めた。

Figure 5.5に見られるように $2p_{10}$ 準位のオリエンテーション緩和速度は、アライメント緩和速度と同様、ヘリウム原子数密度に対して直線傾向から著しくずれている。一方、Figure 5.6(c)に見られるように $2p_5$ 準位のオリエンテーション緩和速度のヘリウム原子数密度依存性は線形傾向にある。

アライメント緩和と同様、オリエンテーション緩和は原子衝突過程（原子・イオン・電子衝突）と、ふく射再吸収により起こる。それぞれの過程によるオリエンテーション緩和が互いに影響を及ぼさないと仮定すると

$$\gamma_1 = \gamma_1^{\text{Ne}} + \gamma_1^{\text{He}} + \gamma_1^{\text{ion}} + \gamma_1^{\text{e}} + \gamma_1^{\text{re-ab}} \quad (5.11)$$

と書くことができる。 γ_1^{Ne} 、 γ_1^{He} 、 γ_1^{ion} 、 γ_1^{e} それぞれネオン原子、ヘリウム原子、イオン、電子との衝突によるオリエンテーション緩和速度、また $\gamma_1^{\text{re-ab}}$ はふく射再吸収によるオリエンテーション緩和速度である。アライメント緩和速度の解析の際と同様に、以降の解析ではイオン、電子衝突は無視できると仮定する。また、ネオン原子衝突によるオリエンテーション緩和速度係数はヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和速度係数と同程度と考えられる。

励起ネオン原子（ $2p_{10}$ 準位）に対して、自己吸収法により得られた線吸収をパラメータとするMonte Carloシミュレーション(Appendix A参照)を用いて、 $\gamma_1^{\text{re-ab}}$ を計算した。観測した γ_1 から、Monte Carloシミュレーションにより計算した $\gamma_1^{\text{re-ab}}$ を差し引いた結果をFigure 5.7に示す。図中の直線は切片を0として最小二乗フィッティングした結果である。この直線の傾きを実験から求まるオリエンテーション緩和速度係数と決めた。

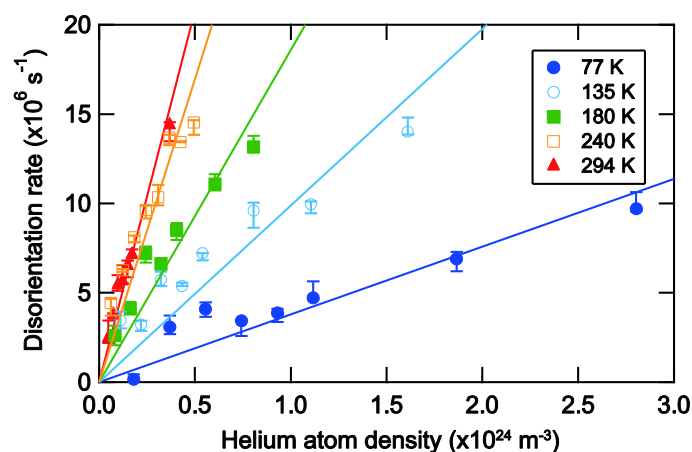


Figure 5.7 $2p_{10}$ 準位のLIFで観測されたオリエンテーション緩和速度からふく射再吸収によるオリエンテーション緩和速度を差し引いた値のヘリウム原子数密度依存性。実線は切片を0として最小二乗直線フィッティングした結果。

$2p_5$ 準位に対しては、ふく射再吸収による効果は一定であるとして、Figure 5.5(c) のデータを切片を固定せずに最小二乗直線フィッティングし、この直線の傾きを実験から求まるオリエンテーション緩和速度係数と決めた。

以上の結果より得られたアライメント緩和速度係数とオリエンテーション速度係数の温度依存性をそれぞれ Figure 5.8、Figure 5.9 に示す。

Figure 5.8 には、本章で得られた値を丸のシンボルで、第3章で得られたアライメント緩和速度係数も同時に×のシンボルで示す。両者は概ね誤差の範囲内で一致した。このことから、偏極緩和速度係数に対して本実験で用いた程度の磁場の影響は無視できると考えられる。

Figure 5.9 で見られるオリエンテーション緩和速度係数は温度に対して正の相関をもっており、 $2p_{10}$ 準位、 $2p_5$ 準位に対してそれぞれ温度の 2.1 乗、0.28 乗のべき依存性が見られた。

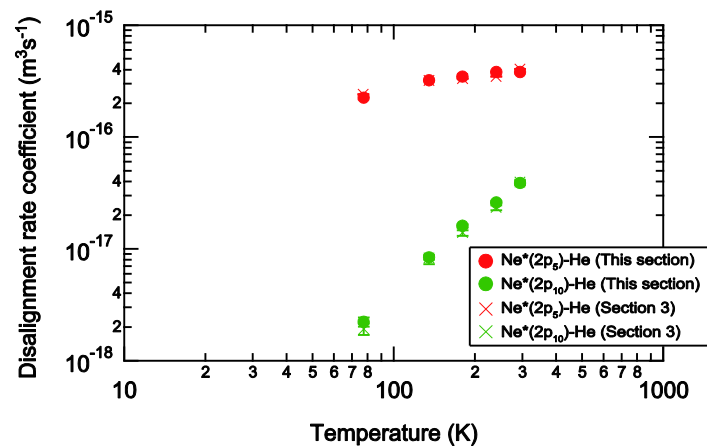


Figure 5.8 励起ネオン原子($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位)のアライメント緩和速度係数の温度依存性。丸印、×印で示したものはそれぞれ本章、第3章で得られたアライメント緩和速度係数。

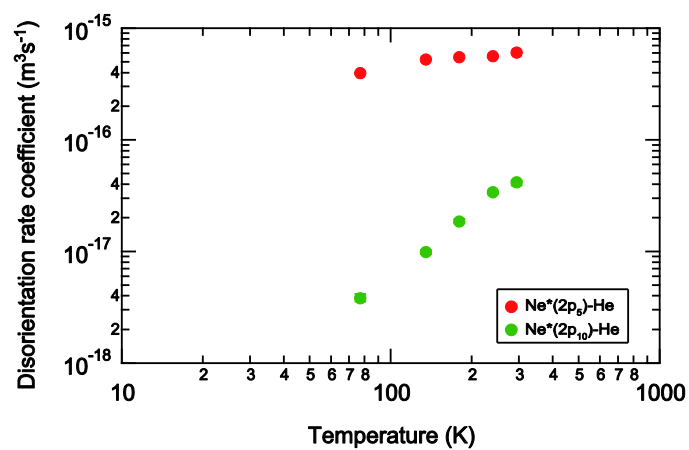


Figure 5.9 励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和速度係数の温度依存性。

第 6 章 考察

本章ではこれまでの章で決定してきた偏極緩和速度係数に対して考察を行う。

6.1 励起ネオン原子の偏極緩和速度係数と温度依存性

6.1.1 Bahrim らの理論との比較

Figure 6.1 (a)、(b) に Hennecart、Bahrim らによって構築された量子数 Ω で分類した励起ネオン原子と基底ヘリウム原子の断熱ポテンシャル曲線を示す。また Figure 6.1(c) に $\Omega = 1$ のポテンシャルエネルギーから $\Omega = 0$ のポテンシャルエネルギーを引いた値を示す。これをポテンシャルエネルギーの異方度と呼ぶことにする。

まず Figure 6.1(a)、(b) に見られる断熱ポテンシャルは、原子間距離が無限大の極限で、Figure 1.3 に示した励起ネオン原子の各準位の励起エネルギーに一致するように縦軸をとっている。また、ある衝突エネルギーをもつ衝突原子対が衝突径数 0 で衝突した場合の最近接距離（以下古典的転回点と呼ぶ）は、励起エネルギーと衝突エネルギーを足した値がポテンシャルエネルギーと等しくなる点における原子間距離（複数ある場合にはそのうちの最も大きな原子間距離）と等しい。例として衝突エネルギーが 5 ~ 100 meV のいくつかの場合における古典的転回点を $\Omega = 0$ の断熱ポテンシャル曲線に対して Table 6.1 に示す。

Figure 6.1 に示した範囲で断熱ポテンシャルは 0.7 ~ 1.8 eV 程度変化しているのに比べて、Figure 6.1 (c)に示した異方度の変化は、1~2 桁小さいことが見て取れる。

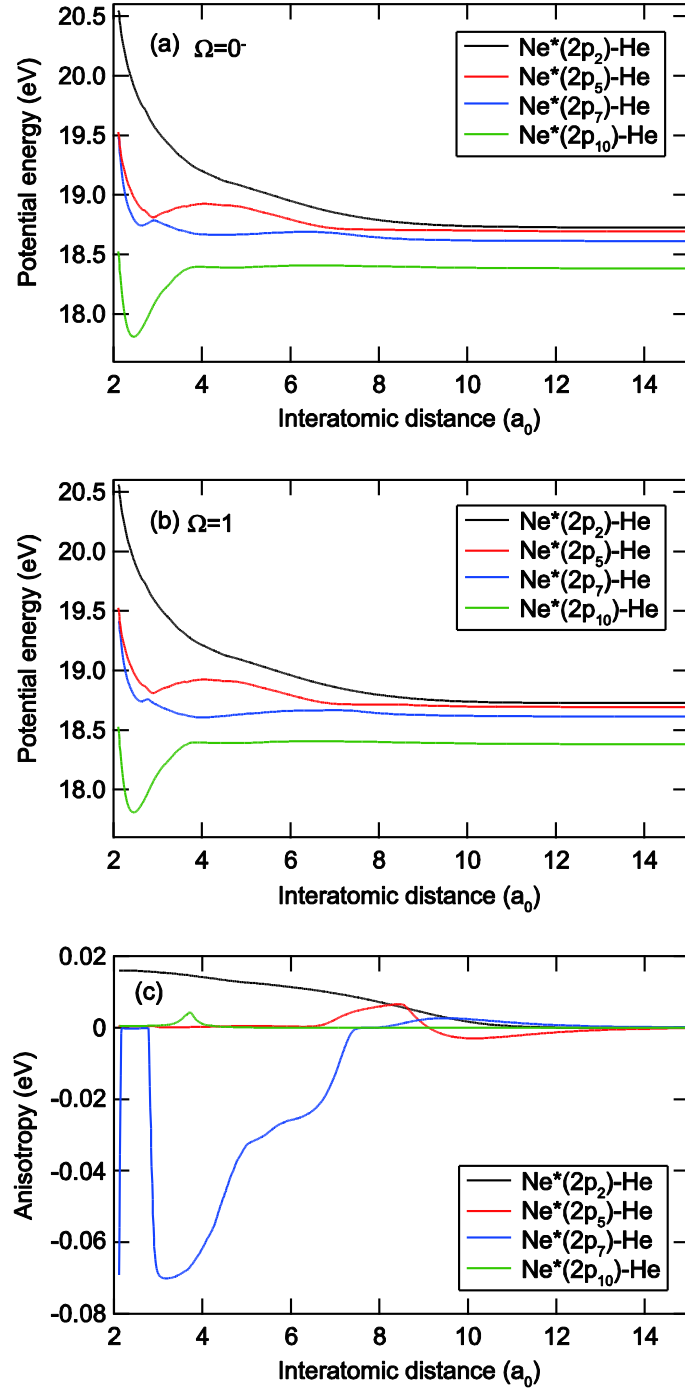


Figure 6.1 励起ネオン原子 ($2p_2, 2p_5, 2p_7, 2p_{10}$ 準位) とヘリウム原子の(a) $\Omega=0$ 、(b) $\Omega=1$ に対する断熱ポテンシャル曲線。(c) 断熱ポテンシャルの異方度。 a_0 はボーア半径 ($= 0.529 \times 10^{-10} \text{ m}$)。

Table 6.1 $\Omega=0^\circ$ の断熱ポテンシャル曲線に対する各衝突エネルギーでの古典的転回点 (表中の単位は a_0)

State	5 meV	10 meV	20 meV	30 meV	100 meV
$2p_2$	10.85	10.11	9.35	8.89	7.33
$2p_5$	10.82	9.46	7.21	6.88	6.00
$2p_7$	10.05	9.16	8.38	7.97	3.41
$2p_{10}$	10.38	9.27	7.71	2.13	2.11

次に Bahrim らによって計算された、励起ネオン原子 ($2p_2$ 、 $2p_5$ 、 $2p_7$ 、 $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和断面積とオリエンテーション緩和断面積の衝突原子対の衝突エネルギー依存性をそれぞれ Figure 6.2 (a)、(b)に示す[43、44]。

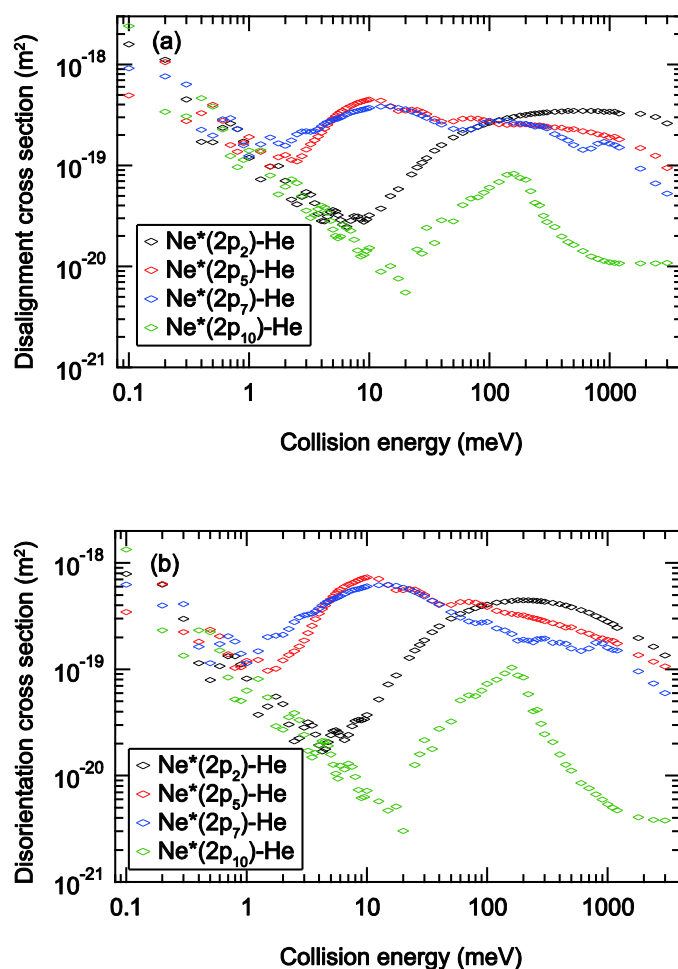


Figure 6.2 励起ネオン原子($2p_2$, $2p_5$, $2p_7$, $2p_{10}$ 準位)のヘリウム原子衝突による (a) アライメント緩和断面積の運動エネルギー依存性、(b)オリエンテーション緩和断面積の運動エネルギー依存性。

Figure 6.3 に例として 15、77、180、294、1000 K のマクスウェル速度分布をもつ粒子のエネルギー分布関数を示す。

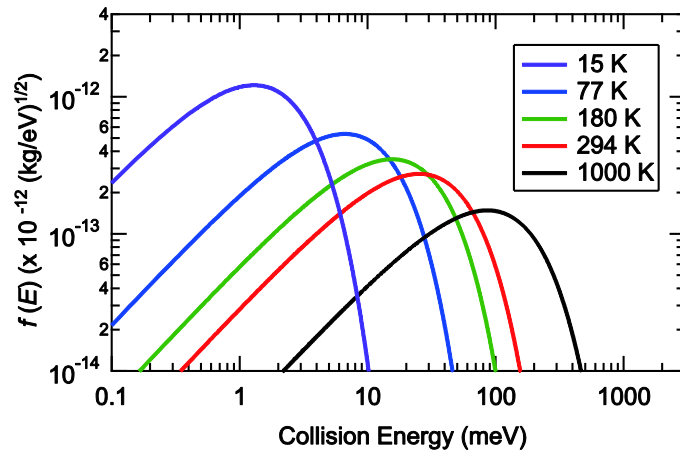


Figure 6.3 15、77、180、294、1000 K のマクスウェル速度分布関数。

Bahrim らは (2.3b) 式の関係から、アライメント緩和速度係数とオリエンテーション緩和速度係数の温度依存性を示した[43、44]。その結果を **Figure 6.4** に実線で示す。なお、**Figure 6.4** には比較のため、原子間ポテンシャルを修正する前の理論値[41]、および実験値もともに示した。原子間ポテンシャルの修正は励起ネオン原子の分極率を考慮することで行われた。分極率の比較的大きな $2p_5$ 準位のアライメント緩和速度係数は大きく変化した、 $2p_{10}$ 準位の分極率は他の 3 準位に比べて小さいため、原子間ポテンシャルの修正はアライメント緩和速度係数に対してほとんど寄与しなかった[43]。

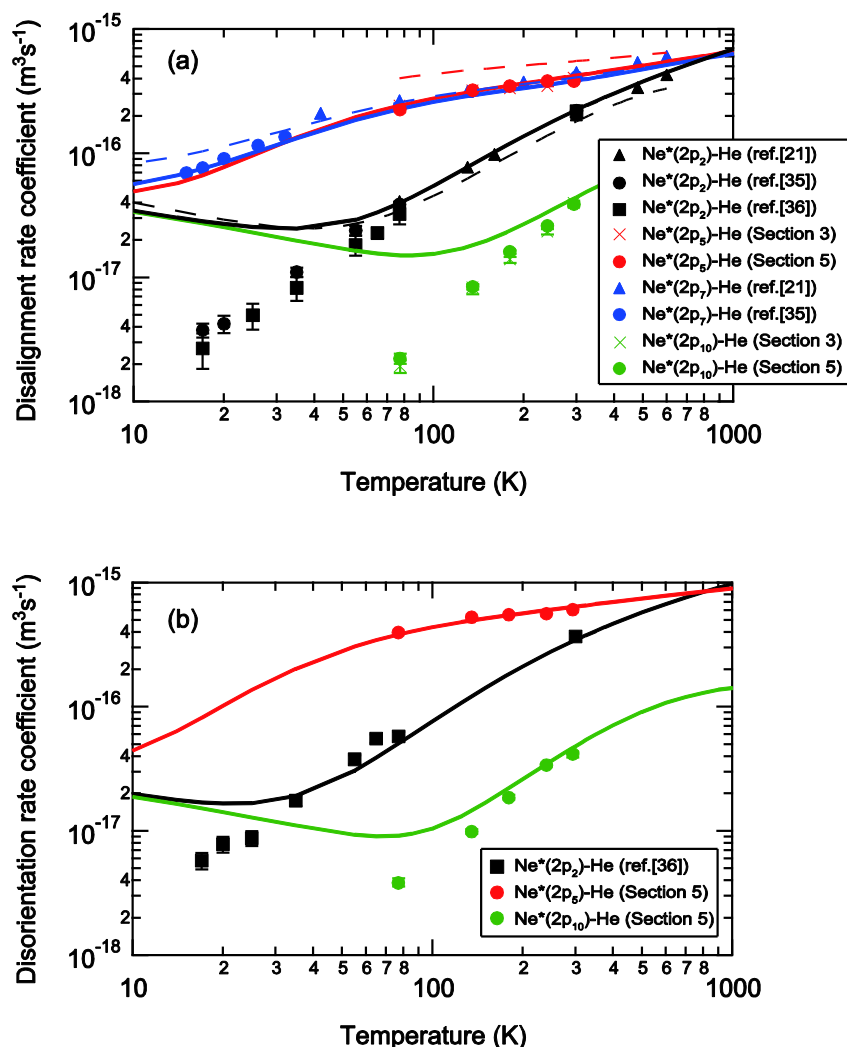


Figure 6.4 (a) 励起ネオン原子(2p₂、2p₅、2p₇、2p₁₀ 準位)のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和速度係数の温度依存性、(b) 励起ネオン原子(2p₂、2p₅、2p₁₀ 準位)のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和速度係数の温度依存性。(a)破線は[41]で構築した原子間ポテンシャルに基づく理論値。実線は原子間ポテンシャルを修正することによって得た理論値[43]。(b) 実線は Bahrim らによる理論値[44]。

まず励起ネオン原子 (2p₅、2p₁₀ 準位) のアライメント緩和速度係数について Bahrim らによる計算値と実験値を比較する。2p₅ 準位に対して、原子間ポテンシャルを修正した後の理論値と実験値は極めてよく一致している。また、2p₁₀ 準位に対しては、294 K で比較的良く一致するものの、低温になるにつれて、実験値と理論値の乖離は大きくなっている。また、2p₂ 準位や 2p₇ 準位を含めて、比較的大きな速度係数となる領域については理論と実験は良く一致していることが分かる。また、アライメント緩和速度係数の大小の準位に対する依

存性は定性的には実験と合致している。

次に励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) のオリエンテーション緩和速度係数について比較する。ここでも、 $2p_5$ 準位に対して極めてよく一致している一方、 $2p_{10}$ 準位に対しては、180 ~ 294 K で比較的良く一致するものの、低温になるにつれて、実験値と理論値の乖離は大きくなっている。

$2p_2$ 準位や $2p_{10}$ 準位において低温域で見られる実験値と理論値の乖離の原因は、Figure 6.2 で見られるように、断面積の理論値が低エネルギーに向かって有限値に収束しているためである。Bahrim によれば、低エネルギー極限での断面積の収束値は、散乱長と呼ばれる入射原子が見る標的原子の半径を a としたときに $4\pi a^2$ となる[60]。しかしながら、断熱ポテンシャルの異方度は原子間距離が無限大の極限で 0 になるため、散乱が起こるのに必要な波動関数の位相差は生じない。従って、Bahrim らの理論ポテンシャルは原子間距離が長距離な領域での異方度を過大評価していることを示唆している。

6.1.2 Omont、Wang らの理論との比較

Omont、Wang らは原子間ポテンシャルが原子間距離の-6 乗に比例するポテンシャルに従うとし、直線軌道近似を仮定することで、偏極緩和断面積に対して(1.6)を得た[37、38]。(1.6)より緩和速度係数は $T^{3/10}$ に比例する。Figure 6.5 に励起ネオン原子のヘリウム原子衝突による偏極緩和速度係数の温度依存性と Omont、Wang らの理論に基づく緩和速度係数が $T^{3/10}$ に従う直線をプロットした。励起ネオン原子 ($2p_5$ 準位) の偏極緩和速度係数に対して良く一致することが分かる。

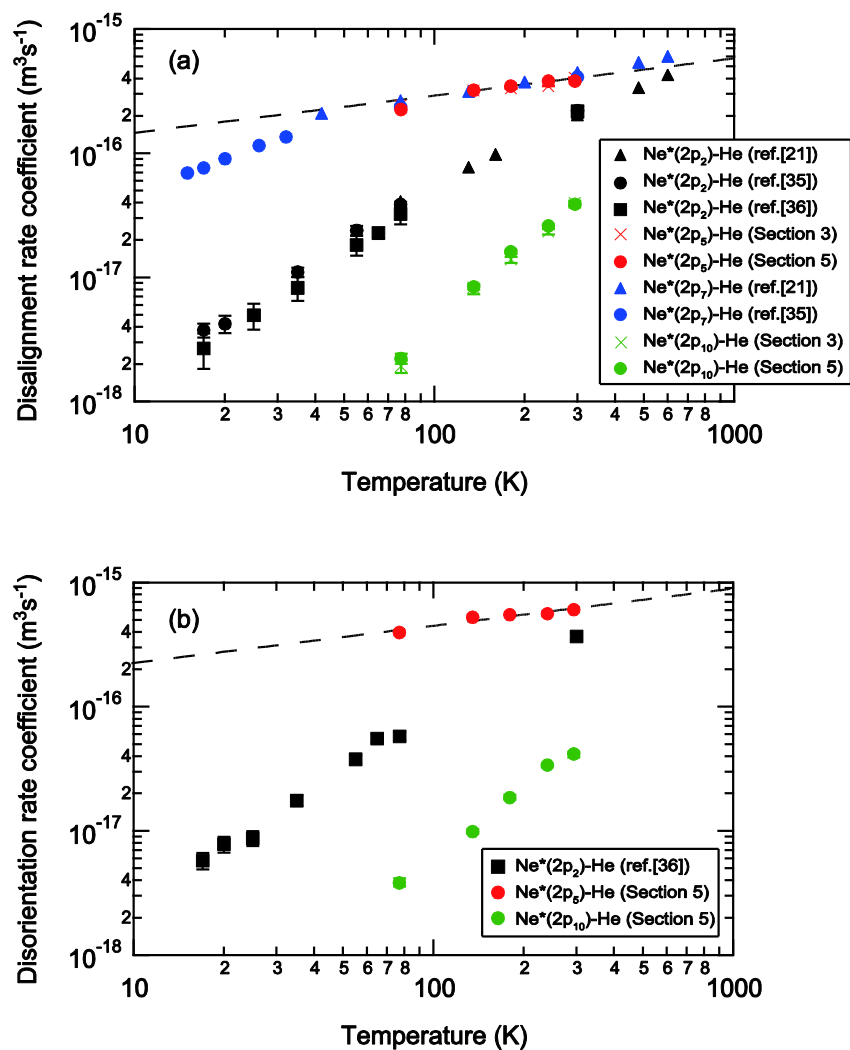


Figure 6.5 励起ネオン原子のヘリウム原子衝突による偏極緩和速度係数の温度依存性。破線は Omont、Wang らの理論に基づく $T^{3/10}$ に従う直線。

6.2 励起ネオン原子のアライメント緩和速度係数に対するオリエンテーション緩和速度係数の比

Omout、Wang らは(1.6) 式で、 $\phi_j^{(x)}$ は状態多極子に依存する定数であり、 $J=1$ の原子に対してオリエンテーション緩和速度係数のアライメント緩和速度係数に対する比（以下 O/A 比とする）は温度によらず、 $5/3$ であることを示した[37、38]。一方、Bahrim らの理論によると、O/A 比は温度によって変化する。励起ネオン原子（ $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位）のヘリウム原子衝突に対して、Bahrim らによって計算された O/A 比の理論曲線[44]をそれぞれ Figure 6.6(a)、(b)に示す。また、併せて Omout、Wang らによる O/A 比の理論値 $5/3$ と、実験値より計算した O/A 比を示す。

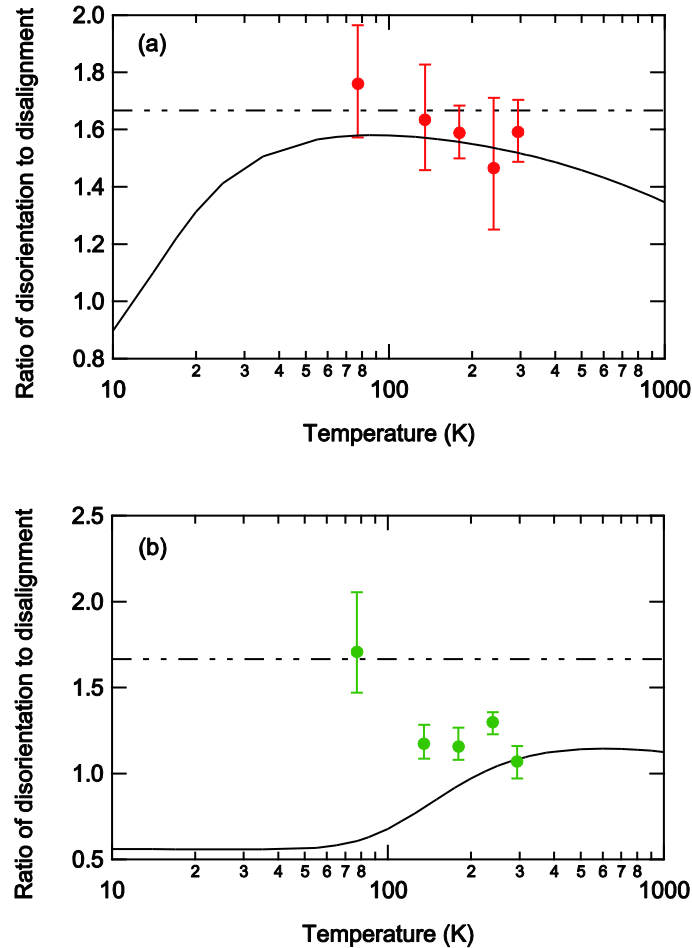


Figure 6.6 (a) 励起ネオン原子（ $2p_5$ 準位）、(b) 励起ネオン原子（ $2p_{10}$ 準位）の O/A 比。実線はBahrimらによる理論値。破線はOmout、Wangによる理論値。

Bahrim の理論曲線は、 $2p_5$ 準位の O/A 比に対して、1.6 程度をピークに低温衝突になるにつれ値が減少する。また、 $2p_{10}$ 準位に対しては 1.1 程度をピークに低温衝突になるにつれ減少に転じている。 $2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位に共通して、ある温度以下の低温領域で 1 を下回っている。

Bahrim らの理論による O/A 比と実験を比較すると、 $2p_5$ 準位に対しては、誤差の範囲内で一致している。一方、 $2p_{10}$ 準位に対しては、294 K で実験と理論は良く一致しているが、実験が温度に対して負の相関を取っているのに対して、理論は正の相関を取っており、294 K 以下の低温領域で乖離する結果となった。

また Omont、Wang らの理論と実験を比較すると、 $2p_5$ 準位に対しては誤差の範囲内で一致する。一方、 $2p_{10}$ 準位に対しては 77 K では良く一致しているが、それ以上の高温で実験結果は乖離した。

6.3 励起アルゴン原子の偏極緩和速度係数と平均断面積

Omout, Wang らは(1.6)のように偏極緩和断面積が入射原子の分極率の $2/5$ 乗に比例することを示した。この式との比較を行うため、まず励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のヘリウム、ネオン、アルゴン原子衝突によるアライメント緩和速度係数を平均速度で除し、それぞれのアライメント緩和平均断面積を算出した。これらの値をそれぞれ σ_{He} 、 σ_{Ne} 、 σ_{Ar} と呼ぶことにする。 σ_{He} 、 σ_{Ne} 、 σ_{Ar} の温度依存性を Figure 6.7 に示す。

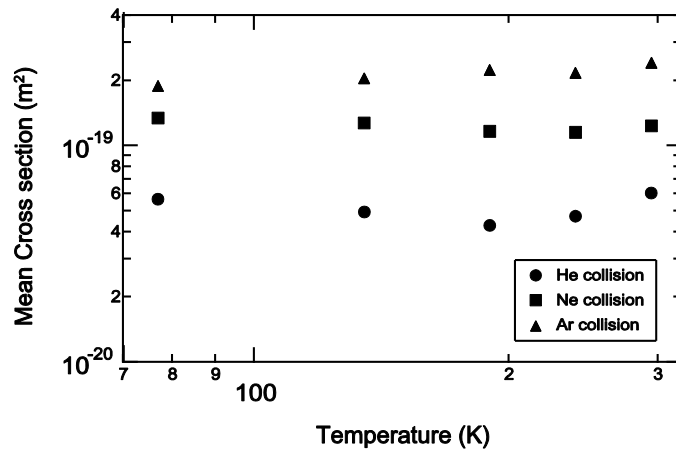


Figure 6.7 励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のヘリウム、ネオン、アルゴン原子衝突によるアライメント緩和平均断面積。

σ_{He} 、 σ_{Ne} 、 σ_{Ar} の温度に対する明確な依存性は見られなかった。一方、入射原子に対しては強い依存性が見られ、大きな原子番号の入射原子に対して大きな平均断面積が見られた。Figure 6.8 に σ_{Ne} 、 σ_{Ar} を σ_{He} で除した値を示す。

Figure 6.8 中の破線と一点鎖線は(1.6)をもとに計算したものである。(1.6)中で p_B^2 は分極率に対しては[61]の値を用いた。また、 ΔE_B は、時間依存の 2 次の摂動展開において、入射原子の基底状態の波動関数に上準位の波動関数が混合することで現れる効果である。 $\langle \Delta E_B \rangle$ は Carrington らによって、第一励起状態のエネルギーと取ることで近似できるとされている[26]。そこで σ_{He} 、 σ_{Ne} 、 σ_{Ar} の $\langle \Delta E_B \rangle$ をヘリウム、ネオン、アルゴンの第一励起状態の励起エネルギー 21.2、16.7、11.8 eV とした[56]。

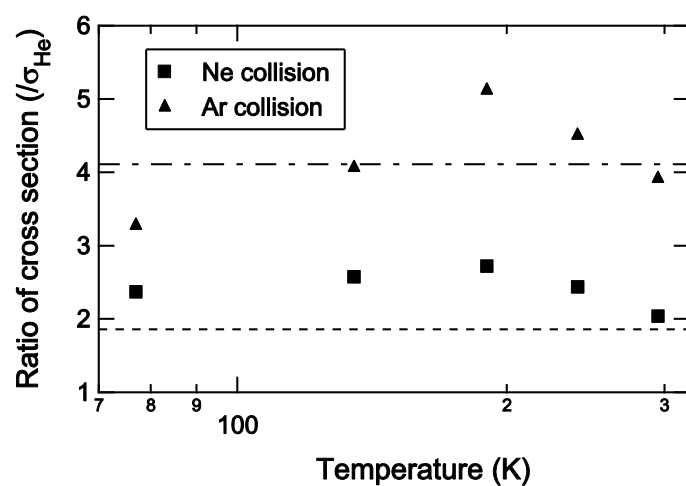


Figure 6.8 ヘリウム原子衝突による励起アルゴン原子（ $2p_2$ 準位）のアライメント緩和平均断面積に対するヘリウム原子衝突、アルゴン原子衝突による平均断面積の比。

Figure 6.8 で見られる Omont、Wang らの理論から算出した σ_{Ne} 、 σ_{Ar} の σ_{He} に対する比の理論値は大きさに対しては比較的良く実験を再現している。しかしながら、実験では理論からは予想されていない温度に対する依存性が見られた。このことは、本実験の温度領域における衝突を再現するためには、van der Waals ポテンシャルのみでなく、原子雲同士が重なる程度に近づいた際に生じる短距離力の効果も含める必要があることを示唆している。

第7章 総括

低速原子衝突による偏極緩和過程の解明を目指し、偏極緩和速度係数の温度依存性、標的原子依存性、入射原子依存性を明らかにする研究を行った。

第3章では、励起ネオン原子 ($2p_5$, $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和観測を行った。LIFを直線偏光分離して測定し、自己吸収法とMonte Carlo シミュレーションによるふく射再吸収の評価を通して、これまで決定されていなかった励起ネオン原子 ($2p_5$, $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるアライメント緩和速度係数を77 ~ 294 Kの範囲で決定した。 $2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位のアライメント緩和速度係数はそれぞれ温度の2.2乗、0.35乗のべきに従うことを明らかにした。

第4章では、励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のヘリウム、ネオン、アルゴン原子衝突によるアライメント緩和観測を行った。第3章と同様の実験方法で、励起アルゴン原子 ($2p_2$ 準位) のアライメント緩和速度係数を77 ~ 295 Kの範囲で決定した。得られた緩和速度係数は、温度に対して正の相関を示したが温度に対する明確なべき依存性は見られなかった。また、入射原子の分極率が大きくなるにつれてアライメント緩和速度係数は増大することを明らかにした。

第5章では励起ネオン原子($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位)のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和観測を測定した。LIFを円偏光分離、直線偏光分離して測定した。またふく射再吸収による緩和速度を評価し、これまで決定されていなかった励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) のヘリウム原子衝突によるオリエンテーション緩和速度係数を77 ~ 294 Kで決定した。得られたオリエンテーション緩和速度係数は、温度に対して正の相関を示し、 $2p_{10}$ 、 $2p_5$ 準位に対してそれぞれ、温度の2.1乗、0.28乗のべきに従うことを明らかにした。また、同時にアライメント緩和速度係数も決定し、第3章で得られた値と比較した結果、磁場による効果は無視できることも示した。

第6章では、第3、4、5章で得たアライメント、オリエンテーション緩和速度係数に関して考察を行った。6.1節では励起ネオン原子 ($2p_5$ 、 $2p_{10}$ 準位) の緩和速度係数の温度依存性についてこれまでに発表されている Bahrim、Omont、Wang らの理論との比較を行った。6.1.1節では Bahrim らの理論と比較した。アライメント緩和速度係数、オリエンテーション緩和速度係数ともに、 $2p_5$ 準位に対しては理論と実験は極めてよく一致した。一方、

2p₁₀ 準位に対してはアライメント緩和速度係数に対しては 294 K で、オリエンテーション緩和速度係数に対しては 294、180 K で比較的良く一致したものの、低温になるにつれて、実験値と理論値の乖離は大きくなった。6.1.2 節では 2p₅ 準位の偏極緩和速度係数が Omont、Wang らの示した温度依存性に対して良く一致することを示した。一方 2p₁₀ 準位の偏極緩和速度係数は理論的な予測よりもおおきなべき依存を示した。6.2 節ではオリエンテーション緩和速度係数のアライメント緩和速度係数に対する比 (O/A 比) について考察した。2p₅ 準位に対して O/A 比は 1.6 程度で有意に変化しなかった。この傾向は Bahrim らや Omont、Wang らの理論と誤差の範囲内で一致した。一方、2p₁₀ 準位に対して O/A 比は 294 K の 1 程度から、温度の減少とともに 2 程度まで増大した。この傾向は Bahrim らや Omont、Wang らの理論とは合致しなかった。

6.3 節では励起アルゴン原子 (2p₂ 準位) のアライメント緩和に関して、温度依存性と衝突原子依存性について、 σ_{Ne} 、 σ_{Ar} の σ_{He} に対する比を Wang らの理論値と比較した。その結果、Omont、Wang らの理論値は比較的良くこの比を再現したが、実験は温度に対する依存性を示した。

以上の議論から、偏極緩和過程に対して、本実験は以下のことを示唆している。

- ・単純な van der Waals 原子間ポテンシャルを仮定した Omont、Wang らの理論には限界がある。
- ・Bahrim らによるモデルポテンシャルを用いた計算手法では実験と合わない低速エネルギーの極限である有限値への収束が見られるが、実験の温度に対する正の相関を再現するには原子間ポテンシャルの長距離領域での異方度を過大評価している。

Appendix A 自己吸収法とふく射再吸収によるポピュレーション緩和と偏極緩和のシミュレーション

ここでは第 3、4、5 章で述べたふく射再吸収がポピュレーション緩和と偏極緩和に与える影響を定量評価する自己吸収法と Monte Carlo シミュレーションモデルについて紹介する。

A.1 自己吸収法

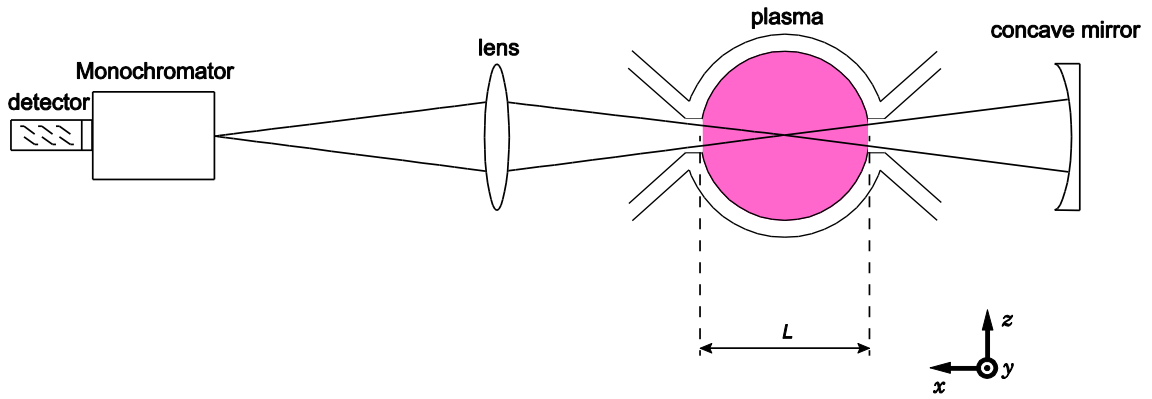


Figure A.1 自己吸収法の概念図。

観測方向を x 方向とし、原点を中心に直径 L の一様な Figure A.1 のような円筒形プラズマを考える。プラズマの中心を原点にとり、プラズマ内部のある場所 r 近傍における周波数 ν の光強度 $I(\nu, r)$ の変化は、

$$dI(\nu, r) = -\kappa_\nu I(\nu, r) dr + \eta_\nu dr \quad (\text{A.1})$$

と書ける。ここで κ_ν 、 η_ν はそれぞれ周波数 ν に対するプラズマの吸収係数、放出係数である。源泉関数 S_ν を $S_\nu = \kappa_\nu / \eta_\nu$ で定義すると、

$$I(\nu, r) = S_\nu (1 - \exp(-\kappa_\nu r)) \quad (\text{A.2})$$

となる。従って、プラズマ中心で発生した光が、プラズマの外へ放出されときの光強度は、

$$I(\nu, L/2) = S_\nu (1 - \exp(-\kappa_\nu L/2)) \quad (\text{A.3})$$

となる。ここで、ある遷移に対応する幅を持った発光線を考える。光強度の発光線全体にわたる積分は、

$$I_1 = S_\nu \int_{\text{line}} (1 - \exp(-\kappa_\nu L/2)) d\nu \quad (\text{A.4})$$

と書ける。

次に、放電プラズマの分光計測装置の反対側に凹面鏡を設置して発光を計測する場合を考える。このときの光強度の発光線全体にわたる積分は I_1 を用いて、

$$I_2 = I_1 + S_\nu \int_{\text{line}} (1 - \exp(-\kappa_\nu L/2)) \exp(-\kappa_\nu L) d\nu \quad (\text{A.5})$$

と書ける。

光の吸収を表すパラメータとして、線吸収 α を

$$\alpha = 1 - \frac{I_2 - I_1}{I_1} \quad (\text{A.6})$$

で定義する。(A.4)、(A.5)より、

$$\alpha = \frac{\int_{\text{line}} (1 - \exp(-\kappa_\nu L))^2 d\nu}{\int_{\text{line}} (1 - \exp(-\kappa_\nu L)) d\nu} \quad (\text{A.7})$$

となる。

吸収係数が、周波数に対してガウス型の分布をするときの中心値を κ_0 とする。プラズマ中における吸収の目安として、光学的厚さ $k_0 L$ を

$$k_0 L = \kappa_0 L \quad (\text{A.8})$$

で定義する。線吸収の光学的厚さに対する依存性を Figure A.2 に示す。

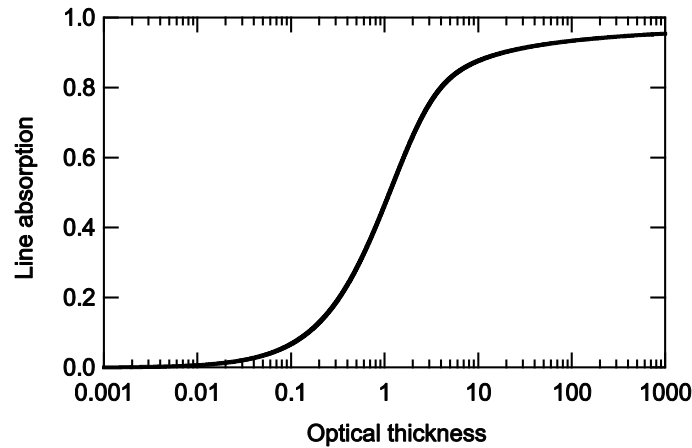


Figure A.2 線吸収の光学厚さに対する依存性。

上下準位のポピュレーションは一般に r に依存しており、 κ_ν と η_ν も r に依存する。上下準位のポピュレーション空間分布が同一の形状をしていれば、 κ_ν と η_ν の r 依存性が同じになり、 S_ν の r 依存性はなくなる。そのため、 S_ν の一様性を仮定した以上の議論は有効である。

一方、上下準位のポピュレーション空間分布が同一の形状でなければ、これまでの議論は無効であるが、Fujimoto らは $k_0L < 2$ の条件では、 α と k_0L の関係にポピュレーション分布はほぼ影響しないことを示している [62]。以降では、(A.8) で定義した光学厚さを改めて、

$$k_0L = \int_{-L/2}^{L/2} \kappa_0(r) dr \quad (\text{A.9})$$

と再定義する。

A.2 下準位のポピュレーションと吸収係数

吸収係数と遷移に関わる下準位のポピュレーションには

$$\int_{\text{line}} \kappa_\nu d\nu = \frac{e^2 N f}{4m_e c \epsilon_0} \quad (\text{A.10})$$

の関係がある。ここで、 N は下準位のポピュレーション、 e は電気素量、 m_e は電子の質量、 c は光速、 ϵ_0 は真空の誘電率である。 κ_ν の振動数分布がガウス型であるときには、 N の光学厚さとの関係は

$$N = 2\nu_0 \sqrt{\frac{2\pi k_B T \ln 2}{m_A c^2}} \frac{8\pi m_e c \epsilon_0}{e^2 f L} k_0 L \quad (\text{A.11})$$

となる。ここで、 m_A は原子の質量である。

A.3 ふく射再吸収による偏極緩和シミュレーション

Seo らが開発したふく射再吸収による偏極緩和計算 Monte Carlo シミュレーションモデルを紹介する。このシミュレーションで想定している実験系は太さ 5 mm の円筒内のグロー放電ネオン-希ガス混合気体もしくはアルゴン-希ガス混合気体プラズマである。Figure A.3 に放電管の概略図を示す。円筒状プラズマは y 軸方向に無限の長さを持つことを仮定している。

放電管円筒中心 1 mm から、 $M = 0$ もしくは -1 に完全偏極した $J = 1$ の励起原子から下準位への放射を考える。

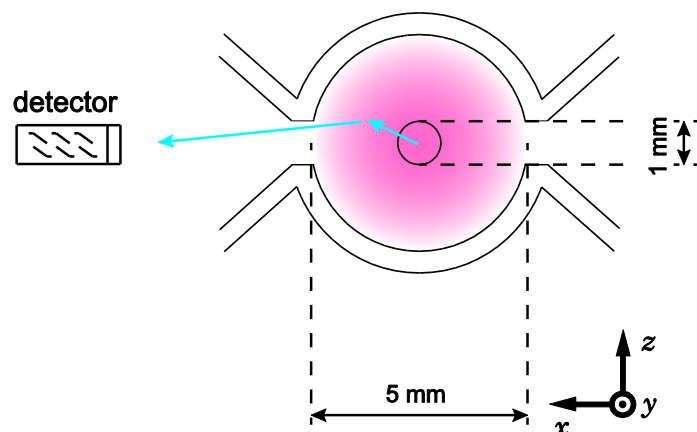


Figure A.3 放電管の概略図。

シミュレーションでは以下の4つの過程(a)-(d)を繰り返す。

(a) 光を放出する遷移の決定

励起された位置にいる励起準位が、その励起寿命を用いて確率的に決められるある時刻に下準位に遷移する。下準位が複数存在する場合、それぞれの下準位への遷移に対応した遷移確率によってどの下準位・磁気副準位へ遷移するかを決定する。

(b) 光を放出する方向と偏光方向と光の周波数の決定

遷移に対応した振動双極子からの放出を考え、放出される光の方向(θ, ϕ)とその偏光を決定する。ここで、 θ, ϕ はそれぞれ極座標系における極角、方位角である。このとき上準位から放出される光の周波数 ν をガウス関数型スペクトルを仮定してランダムに決定する。

(c) 光を吸収する位置の決定

定められた微小距離を進んだ時点で光が吸収されるか、されないかの判定をプラズマの光学的厚さを用いて行う。ここで光学的厚さは周波数に対してガウス型分布をしているとする。プラズマ中を進行する光が放電管の外へ出れば、上準位の磁気副準位の占有数を記録し、計算を終了する。下準位原子によって再吸収されれば次のステップへ進む。

(d) 光を再吸収する遷移の決定

(c) で決定した光を吸収する位置で、下準位状態の原子が光を吸収する。上準位のそれぞれの磁気副準位に励起される確率を計算し、その確率の比を用いてどの上準位の磁気副準位に励起されるかを決定する。再び励起状態となり(a)にもどる。

シミュレーション結果より、上準位の磁気副準位ポピュレーションの時間発展が求まり、ふく射再吸収による偏極緩和速度、みかけのポピュレーションの減衰の時定数が評価される。

シミュレーションの詳細については、Appendix A.4で記述する。

A.4 ふく射再吸収による偏極緩和シミュレーションの詳細

前節で論じたふく射再吸収による偏極緩和の Monte-Carlo シミュレーションによる計算の具体的な計算過程について記述する。

(a) 光を放出する遷移の決定

上準位の磁気副準位 M_u をもつ状態を状態ベクトル $|M_u\rangle$ で表すことにする。いま、上準位原子が混合状態にあるとし、その波動関数を次式のように表す。

$$|\psi\rangle = \sum_{M_u} p_{M_u} |M_u\rangle \quad \text{ただし} \quad \sum_{M_u} |p_{M_u}|^2 = 1 \quad (\text{A.12})$$

磁気副準位 $(J_u, M_u) \rightarrow (J_l, M_l)$ 間の相対的な遷移確率 $A(J_u, M_u : J_l, M_l)$ は、式(2.6)のように 3-j 記号を用いて

$$\begin{pmatrix} J_u & 1 & J_l \\ -M_u & -q & M_l \end{pmatrix}^2$$

に比例する。

下準位に複数の磁気副準位が存在するとき、状態ベクトル $|\psi\rangle$ で表されている上準位はあるひとつの下準位磁気副準位 M_l へ遷移し光を放出すると考える。このとき上準位が磁気副準位 M_l に遷移する確率 $P|M_l\rangle$ は、式(A.12)、(2.6) より

$$P(M_l) = \sum_q \sum_{M_u} |p_{M_u}|^2 \begin{pmatrix} J_u & 1 & J_l \\ -M_u & -q & M_l \end{pmatrix}^2 \quad \text{ただし} \quad \sum_{M_l} P(M_l) = 1 \quad (\text{A.13})$$

で与えられる。シミュレーションではFigure 3.12 に示したEinsteinのA係数の比でどの下準位に遷移するかを決め、(A.13) で表される確率によってどの磁気副準位 M_l へ遷移するかを乱数を用いて決定する。この遷移の各々の q に対応する古典的な振動双極子振幅 $d_q(M_l)$ は式(A.12)、(2.6) より

$$d_q(M_l) = C \sum_{M_u} p_{M_u} \begin{vmatrix} J_u & 1 & J_l \\ -M_u & -q & M_l \end{vmatrix} \quad (\text{A.14})$$

$$\sum_q |d_q(M_1)|^2 = 1 \quad (\text{A.15})$$

ここで、 d_{+1}, d_0, d_{-1} はそれぞれ量子化軸に対して左回り、軸方向、右回りの振動双極子振幅を表す。 C は規格化のための定数である。

(b) 光を放出する方向と偏光方向と光の周波数の決定

振幅 $\mathbf{d} = (d_{+1}, d_0, d_{-1})$ を持った振動双極子より放出される光が進む方向 (θ, ϕ) を決定し、進む先での偏光状態を求める。 x, y, z 軸方向に振動する振動双極子の振幅をそれぞれ d_x, d_y, d_z とすると、極座標に対する振幅 d_{+1}, d_0, d_{-1} とは次のような関係にある。

$$\begin{aligned} d_x &= -\frac{1}{\sqrt{2}}(d_{+1} - d_{-1}) \\ d_y &= \frac{i}{\sqrt{2}}(d_{+1} + d_{-1}) \\ d_z &= d_0 \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

x, y, z それぞれの方向に振動する双極子が (θ, ϕ) 方向に作る電場の x, y, z 成分 $\mathbf{A}_x, \mathbf{A}_y, \mathbf{A}_z$ は

$$\begin{aligned} \mathbf{A}_x &= \begin{pmatrix} -\cos^2 \theta - \sin^2 \theta \sin^2 \phi \\ \sin^2 \theta \sin \phi \cos \phi \\ \sin \theta \cos \theta \cos \phi \end{pmatrix} \\ \mathbf{A}_y &= \begin{pmatrix} \sin^2 \theta \sin \phi \cos \phi \\ -\cos^2 \theta - \sin^2 \theta \cos^2 \phi \\ \sin \theta \cos \theta \sin \phi \end{pmatrix} \\ \mathbf{A}_z &= \begin{pmatrix} \sin \theta \cos \theta \cos \phi \\ \sin \theta \cos \theta \sin \phi \\ -\sin^2 \theta \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

となる。テンソル \mathbf{A} を $\mathbf{A} = (\mathbf{A}_x, \mathbf{A}_y, \mathbf{A}_z)$ で定義すると、振幅 $\mathbf{d} = (d_{+1}, d_0, d_{-1})$ を持った振動双極子が (θ, ϕ) 方向に作る電場振幅 \mathbf{E} は

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \mathbf{A} \cdot \mathbf{d} \quad (\text{A.18})$$

となる。 E_x, E_y, E_z はそれぞれ x, y, z 方向に振動する電場振幅であり、座標変換によって、 $\mathbf{E} = (E_{+1}, E_0, E_{-1})$ が求まる。光強度は

$$I = |E_{+1}|^2 + |E_0|^2 + |E_{-1}|^2 \quad (\text{A.19})$$

となる。 I は (θ, ϕ) の関数であり、光が放出する角度の確率分布に相応する。シミュレーションでは、この確率分布に従った乱数を用いて光が放出される角度を決定する。また、上準位から放出される光の周波数 ν をガウス関数型のスペクトルを仮定して、乱数を用いて決

定する。光子がスリットから外に出た場合、シミュレーションはここで終わりになり、偏光状態が記述される。スリットの外に出ない場合には、(c) に進む。

(c) 光を吸収する位置の決定

下準位ポピュレーションの空間分布がプラズマ中心より0 次のベッセル関数分布をしているとすると、光学的厚さ $\kappa_0 2R$ を用いてある位置 x, z における線中心での吸収係数は

$$\kappa_0(x, z) = 2k_0 R \frac{J_0(2.405\sqrt{x^2 + z^2}/R)}{2\int_0^{2.405} J_0(\xi)} \quad (\text{A.20})$$

で与えられる。

ここで、 R はプラズマの半径、 $J_0(\xi)$ は0次のベッセル関数を表す。周波数 ν に対する吸収係数はDopplerプロファイルを用いて

$$\kappa_\nu(x, z) = \kappa_0(x, z) \exp\left(-\frac{mc^2}{2k_B T} \left(\frac{\nu - \nu_0}{\nu_0}\right)^2\right) \quad (\text{A.21})$$

と与える。微小距離 $d\mathbf{r}$ （ここでは、 $r = R/300$ とした。）進む間に光が下準位原子に吸収される確率は $\kappa_\nu(x, z)d\mathbf{r}$ である。

(d) 光を再吸収する遷移の決定

下準位の原子に電場振幅 $\mathbf{E} = (E_{+1}, E_0, E_{-1})$ を持った光が作用し上準位のある一つの磁気副準位 M_u に励起されると考える。例えば、 $1s_3$ 準位($J=0$) から $2p_2$ 準位($J=1$) に励起する場合、上準位の磁気副準位 M_u に遷移する確率 $P(M_u)$ は、

$$P(M_u) = \sum_q \sum_{M_1} |p_{M_1}|^2 \begin{pmatrix} J_1 & 1 & J_u \\ -M_1 & -q & M_u \end{pmatrix}^2 \quad (\text{A.22})$$

と与えられる。この確率によってどの上準位の磁気副準位 M_u に励起するかを決定する。このとき上準位原子の速度分布は吸収する光の周波数にかかわらず完全に再分配しMaxwell速度分布に従うとする。

ここで(a)に戻る。

参考文献

- [1] E. Rutherford, Philosophical Magazine, **21**, 669 (1911).
- [2] H. Geiger and E. Marsden, Philosophical Magazine, **25**, 604 (1913).
- [3] E. Schrödinger, Annal Phys., **385**, 437 (1926).
- [4] C. Ramsauer, Ann. der. Phys., **66**, 546 (1921).
- [5] L. Landau, Phys. Sov., **2**, 46–51 (1932).
- [6] C. Zener, Proc. R. Soc. A, **137**, 696 (1932).
- [7] E. C. G. Stueckelberg, Helv. Phys. Acta, **5**, 369 (1932).
- [8] N. Rosen and C. Zener, Phys. Rev., **40**, 502 (1932).
- [9] Y. N. Demkov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **45**, 195 (1963) (Sov. Phys. JETP **18**, 138 (1964)).
- [10] S. Ohtani, Y. Kaneko, M. Kimura, N. Kobayashi, T. Iwai, A. Matsumoto, K. Okuno, S. Takagi, H. Tawara and S. Tsurubuchi, J. Phys. B, **15**, L533 (1982).
- [11] D. Auerbach, R. Cacak, R. Caudano, T. D. Gaily, C. J. Keyser, J. W. McGowan, J. B. A. Mitchell and S. F. J. Wilk, J. Phys. B, **10**, 3797 (1977).
- [12] K. Okuno, J. Phys. Soc. Jpn., **55**, 1504 (1986).
- [13] E. W. McDaniel, Rev. Sci. Instrum., **28**, 684 (1957).
- [14] N. G. Utterback and G. H. Miller, Rev. Sci. Instrum., **32**, 1101 (1961).
- [15] M. P. I. Manders, J. P. J. Driessen, H. C. W. Beijerinck and B. J. Verhaar, Phys. Rev. Lett., **57**, 1577 (1986).
- [16] T. H. Maiman, Nature, **187**, 4736 (1960).
- [17] A. Javan, D. R. Herriott and W. R. Bennet, Jr., Phys. Rev. Lett., **6**, 106 (1961).
- [18] A. Heller, Phys. Today, **20**, 35 (1967).
- [19] Y. Suematsu, Phys. Today, **38**, 32 (1985).
- [20] P. P. Sorokin and J. R. Lankard, IBM J. Res. Dev., **10**, 162 (1966).
- [21] T. Wakabayashi, A. Yamamoto, T. Yaneda, T. Furutani, A. Hishikawa, and T. Fujimoto, J. Phys. B, **31**, 341 (1998).
- [22] T. Fujimoto, *Plasma Spectroscopy* (CLARENDEON, 2004).
- [23] L. D. Scheerer, Phys. Rev., **166**, 30 (1968).
- [24] C. G. Carrington and A. Corney, Opt. Comm., **1**, 115 (1969).
- [25] C. G. Carrington and A. Corney, J. Phys. B, **4**, 849 (1971).
- [26] C. G. Carrington and A. Corney, J. Phys. B, **4**, 869 (1971).
- [27] C. G. Carrington and A. Corney, J. Phys. B, **5**, 1001 (1972).
- [28] J. P. Grandin, J. de Physique, **34**, 403 (1973) [in French].
- [29] J. P. Grandin and X. Husson, J. de Physique, **39**, 933 (1978) [in French].
- [30] J. P. Grandin and X. Husson: J. de Physique, **42**, 33 (1981) [in French].
- [31] A. Landman and R. Novick, Phys. Rev., **134**, A56 (1964).
- [32] A. Lurio, Phys. Rev., **136**, A376 (1964).

- [33] A. Lurio, Phys. Rev., **140**, A1505 (1965).
- [34] T. Fujimoto and S. Matsumoto, J. Phys. B, **21**, L267 (1988).
- [35] M. Seo, T. Shimamura, T. Furutani, M. Hasuo, C. Bahrim, and T. Fujimoto, J. Phys. B, **36**, 1885 (2003).
- [36] M. Nimura, M. Hasuo, and T. Fujimoto, J. Phys. B **37**, 4647 (2004).
- [37] A. Omont, , J. de Physique, **26**, 26 (1965) [in French].
- [38] C. H. Wang and W. J. Tomlinson: Phys. Rev. **181**, 115 (1969).
- [39] D. Hennecart and F. Masnou-Seeuws, J. Phys. B, **18**, 657 (1985).
- [40] C. Bahrim, H. Kucal and F. Masnou-Seeuws, Phys. Rev. A, **56**, 1305 (1997).
- [41] C. Bahrim, H. Kucal, O. Dulieu and F. Masnou-Seeuws, J. Phys. B, **30**, L797 (1997).
- [42] C. Bahrim and V. V. Khadilkar, J. Phys. B, **41**, 035203 (2008).
- [43] C. Bahrim and V. V. Khadilkar, Phys. Rev. A, **79**, 042715 (2009).
- [44] V. V. Khadilkar and C. Bahrim, J. Phys. B, **43**, 235209 (2010).
- [45] H. Massey, *Atomic and Molecular Collisions* (Taylor & Francis, 1979).
- [46] J. J. Sakurai, *Modern Quantum Mechanics* (Benjamin/Cumming, 1985).
- [47] S. Svanberg, *Atomic and Molecular Spectroscopy: Basic Aspects and Practical Applications* (Springer, 2004).
- [48] T. Fujimoto and A. Iwamae Eds., *Plasma Polarization Spectroscopy* (Springer, 2007).
- [49] K. Blum, *Density Matrix Theory and Applications 3rd ed.* (Springer, 2012).
- [50] A. Omont, Prog. Quantum Electronics, **5**, 69 (1977).
- [51] R. N. Zare, *Angular Momentum: Understanding Spatial Aspects in Chemistry and Physics*, (Wiley, 1988).
- [52] M. Seo, M. Nimura, M. Hasuo and T. Fujimoto, J. Phys. B **36**, 1869 (2003).
- [53] M. Nimura, T. Imagawa, M. Hasuo and T. Fujimoto, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **96**, 547 (2005).
- [54] 砂川重信『理論電磁気学』第3版（紀伊國屋書店, 1999）
- [55] M. I. D'yakonov and V. I. Perel', Sov. Phys. -JETP, **20**, 997 (1966).
- [56] NIST atomic spectra database [<http://www.nist.gov/pml/data/asd/cfm>]
- [57] Y. Uetani and T. Fujimoto, Opt. Commun., **49**, 258 (1984).
- Y. Uetani and T. Fujimoto, Opt. Commun., **55**, 457 (1984)(erratum).
- [58] A. Hirabayashi, Y. Nambu, M. Hasuo and T. Fujimoto, Phys. Rev. A, **37**, 83 (1988)
- [59] T. M. Luke, J. Phys. B, **19**, 843 (1986).
- [60] C. Bahrim (Private Communication, 2012).
- [61] T. M. Miller and B. Bederson, Adv. At. Mol. Phys., **13**, 1 (1978).
- [62] T. Fujimoto and Y. Nishimura, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **34**, 217 (1985).

謝辞

本論文の執筆、および本論文の研究遂行にあたり、大学学部在籍時より 6 年間に亘り多大なるご指導を頂きました本論文主査、京都大学大学院工学研究科機械理工学専攻 蓮尾昌裕教授に心より感謝致します。また、副査の同研究科マイクロエンジニアリング専攻 木村健二教授、原子核工学専攻 伊藤秋男教授にお礼申し上げます。

京都大学大学院工学研究科機械理工学専攻 四竈泰一講師には、実験の技術的提案を頂いたり、その他研究全般に亘り議論させて頂きました。

共同研究者である米国 Lamar 大学物理学科 Cristian Barhim 准教授には本研究に関する助言を頂き、また、2011 年 8 月～9 月にかけては議論のために Lamar 大学に滞在させて頂きました。

本研究の一部は、日本学術振興会 特別研究員奨励費 (24・2572「低速原子衝突過程における実験とモデリング」研究代表者 松隈啓)、日本学術振興会 科学研究費補助金基盤研究(B) (21340170「ピコ秒レーザ励起による大気圧プラズマ中励起移行速度等の決定とプラズマ診断への応用」研究代表者 蓮尾昌裕教授) により行われました。また日本学術振興会 組織的な若手研究者等海外派遣プログラム (R34「国際的横断型アカデミア人材育成のための機械系工学教育研究プログラム」プログラム総括委員会委員長 京都大学大学院工学研究科機械理工学専攻 榎木哲夫教授) により、米国 Lamar 大学への渡航補助 (2011 年 8 月～9 月) を行って頂きました。公益財団法人 京都大学教育研究振興財団には European Physical Society 37th Conference on Plasma Physics (2010 年 6 月) の渡航補助を行って頂きました。

独立行政法人 日本学生支援機構には奨学金の貸与奨学金、財団法人 岩垂奨学会、および財団法人 エヌ・エス知覚科学振興会には給付奨学金として経済的援助を行って頂きました。

最後に、博士課程修了に至るまで様々な支援をしてくれた両親に感謝します。

2013 年 1 月 31 日

松隈 啓